www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

JAARGANG 22, 1960, no. 4 blz. 113-148 Verschenen 15 augustus 1960

Philips Technisch Tijdschrift

BEHANDELEND TECHNISCHE VRAAGSTUKKEN
SAMENHANGENDE MET DE PRODUKTEN, WERKWIJZEN EN ONDERZOEKINGEN
VAN DE N.V. PHILIPS' GLOEILAMPENFABRIEKEN

TOEGEPASTE STATISTIEK

EEN BELANGRIJKE FAZE IN DE ONTWIKKELING VAN DE EXPERIMENTELE WETENSCHAP

door H. C. HAMAKER.

31:519.2

*Op 20 mei 1960 heeft prof. dr. H. C. Hamaker een rede onder bovenstaande titel uitgesproken bij de aanvaarding van het ambt van buitengewoon hoogleraar aan de Technische Hogeschool te Eindhoven. Zoals wij bij soortgelijke gelegenheden herhaaldelijk hebben gedaan — en wellicht nog vaker zullen doen, gezien het toenemende aantal Philipsmedewerkers die tot het hoogleraarschap worden geroepen —, drukken we hier de oratie in extenso af *). De hier en daar speelse wijze waarop prof. Hamaker zijn onderwerp behandelde, is in deze bewerking gehandhaafd, de schrijver heeft de tekst slechts op enkele punten aangepast bij onze lezerskring, die een breder publiek vormt dan de bezoekers van de plechtigheid aan de Technische Hogeschool. Overigens zij hier gewezen op de reeks artikelen over Steekproefsystemen, door dezelfde schrijver een aantal jaren geleden in dit tijdschrift gepubliceerd **). Ging het daar nog alleen om het goed- of afkeuren van partijen, sindsdien heeft de aandacht zich steeds meer gericht op de toepassing van de statistiek bij het speurwerk in algemenere zin. Deze oratie schetst in korte trekken de gedachtengangen bij deze ontwikkeling. Aan het slot is een korte bibliografie toegevoegd van publikaties in vaktijdschriften, in de laatste jaren door de schrijver aan hetzelfde onderwerp gewijd.*

Zo'n 15 jaar geleden was in ons land, evenals in vele andere landen, de statisticus in de industrie nog vrijwel onbekend. De mening dat de statistiek ook bij technologische problemen toepassing zou kunnen vinden en een nuttige rol zou kunnen spelen, werd, zoals ik door eigen ondervinding heb kunnen constateren, door velen met een schouderophalen afgedaan.

Maar de bordjes zijn in de afgelopen 15 jaar drastisch verhangen. In het Philipslaboratorium te Eindhoven werkt heden ten dage een groep van 8 tot 10 personen die van de statistiek een beroep maken en zich uitsluitend bezighouden met speurwerk op dit gebied en met het toepassen van statistische denk- en werkwijzen op technologische en industriële vraagstukken. Daarnaast vinden we in de verschillende vertakkingen van het Philipsconcern kleinere groepen van statistici die zich toeleggen op de specifieke problemen van het desbetreffende bedrijfsonderdeel en de aldaar vervaardigde produkten. Een soortgelijke ontwikkeling heeft plaatsgevonden in andere industrieën in binnen- en buitenland, en de markt is nog geenszins verzadigd. Er is een voortdurende vraag naar goed geschoolde statistici en naar opleiding en voorlichting op verschillend niveau, waardoor het industriële personeel in staat wordt gesteld eenvoudige problemen zelf op te lossen, en te beoordelen wanneer men met succes van de hulp van een beroepsstatisticus gebruik kan maken. We hebben hier stellig niet met een modeverschijnsel te doen. Integendeel, we staan hier naar mijn mening voor een belangrijke faze in de ontwikkeling van ons wetenschappelijk denken, welke een blijvende invloed zal hebben op vrijwel iedere tak van de wetenschap. Bij dit aspect wil ik hier in de eerste plaats een ogenblik stilstaan.

De techniek, die onze hedendaagse maatschappij in zo hoge mate beheerst en bepaalt, bouwt voort op de snelle ontwikkeling van de natuurwetenschappen die eraan is voorafgegaan. Deze zijn op hun beurt voortgesproten uit de aangeboren drang van de mens om de verschijnselen die hij om zich heen waarneemt, te begrijpen en te verklaren. De eerste stap in deze richting is objectief waarnemen, en het vastleggen van de waarneming in een getal, dat met soortgelijke getallen kan worden vergeleken en waarmee wiskundige operaties kunnen worden uitgevoerd.

De ervaring leert echter dat numerieke waarnemingen vrijwel nooit exact reproduceerbaar zijn; bij een herhaling van de proef treden steeds kleinere

*) De rede is uitgegeven door Uitg. Centrex, Eindhoven 1960.
**) H. C. Hamaker, De keuring van partijen door middel van steekproeven; Theorie van steekproefschema's; Steekproefschema's en steekproeftabellen in de praktijk (met J. J. M. Taudin Chabot en F. G. Willemze), Philips techn. T. 11, 187-194, 264-274, 369-378, 1949.

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

of grotere verschillen in de uitkomsten op. Nauwkeurige resultaten worden alleen verkregen indien de waarnemingen worden uitgevoerd onder speciale en met zorg gekozen voorwaarden. Reeds vroeg trok de natuurwetenschappelijke onderzoeker zich daarom terug binnen de muren van speciale laboratoria, waar de waarnemingen konden worden verricht onder zorgvuldig beheerste omstandigheden. Aan de constructie van de gebruikte apparatuur werd uitvoerig zorg besteed, terwijl bij de keuze van de studie-objecten een strenge selectie werd toegepast: slechts die onderwerpen werden tot het onderzoek toegelaten waarbij nauwkeurige en reproduceerbare waarnemingen mogelijk bleken. Hoewel de waarnemingen ook bij de meest uitgebreide voorzorgen nooit volmaakt reproduceerbaar zijn, werd doorgaans een dusdanige nauwkeurigheid bereikt dat men bij de interpretatie van de resultaten de spreiding praktisch buiten beschouwing kon laten. Ten einde de interpretatie van de waarnemingsuitkomsten te vergemakkelijken en eenvoudig te houden, werden eenvoudige problemen gekozen, waarbij men slechts met een beperkt aantal factoren rekening behoefde te houden. Exact, reproduceerbaar waarnemen en nooit meer dan één factor tegelijk variëren, werd het typische ideaal van de klassieke exacte wetenschappen. Vandaar ook de benaming „exact".

De mens is van nature geneigd de betekenis van methodes en denkwijzen die successen opleveren te overschatten en deze een algemener geldigheid toe te schrijven dan alleen binnen het beperkte gebied waarvoor zij werden ontwikkeld. Het overweldigende succes van de exacte wetenschappen heeft er dientengevolge toe geleid dat men de daarbij gevolgde weg lange tijd als de enig juiste heeft gezien, en zij die zich met de exacte problematiek bezighielden, waren geneigd neer te zien op alle onderzoek waarbij men met minder nauwkeurige waarnemingen genoegen moest nemen.

Ten onrechte, want er zijn belangrijke gebieden waar exacte waarneming principieel onmogelijk is, namelijk al die takken van wetenschap die zich bezighouden met levende wezens. Zeker, men kan de levensverrichtingen van één enkele plant of dier exact bepalen, doch een dergelijke waarneming heeft alleen waarde wanneer wij het resultaat kunnen beschouwen als geldig voor de soort in zijn geheel. En bij de interpretatie moet men dan onvermijdelijk rekening houden met de variaties van individu tot individu, die altijd vrij aanzienlijk zijn.

Ook is het dikwijls principieel onjuist zijn proeven tot slechts één enkele factor te beperken. Een goed voorbeeld leveren ons landbouwkundige experimenten. Wenst men b.v. de opbrengst van verschillende aardappelrassen te bepalen in afhankelijkheid van de aard en hoeveelheid van de bemesting, dan kan men het onderzoek naar de invloed van kali- en van stikstofhoudende kunstmest niet scheiden, want we weten dat zij elkaar beïnvloeden. Evenmin kan het experiment in delen worden gesplitst die in verschillende jaren worden afgewerkt, want de veranderlijke weersomstandigheden zullen de resultaten onvergelijkbaar maken. De enige efficiënte wijze van proefnemen is, binnen één seizoen de rassen en bemestingen in één proef te verwerken. Daarbij dienen de elementen van deze proef binnen een beperkt akkergebied zó over het terrein te worden verdeeld dat onvermijdelijke variaties in de vruchtbaarheid van de bodem zo goed mogelijk worden geëlimineerd. Ook dan blijven nog vrij belangrijke toevallige effecten van invloed op de uitkomsten van het experiment. Deze moeten door een doelmatige wiskundige interpretatietechniek in rekening worden gebracht.

Het is de bekende Engelse statisticus Sir Ronald Fisher, werkzaam op het landbouwproefstation te Rothamstead, geweest die tussen de jaren 1920 en 1930 als eerste duidelijk onderkende dat bij het experimenteren in de landbouw geheel andere principes dienen te worden gehuldigd dan bij de laboratoriumproeven van de exacte wetenschap. In zijn boek „The design of experiments" heeft hij ook ineens met ver ziende blik de weg gewezen waarop thans nog steeds wordt voortgegaan [1]).

Volgens deze nieuwe principes kunnen in één proef zonder bezwaar een aantal factoren tegelijk worden gevarieerd, omdat men de proef zo kan inrichten dat het effect van iedere factor afzonderlijk door een doelmatige analyse van de waarnemingen kan worden vastgesteld. Deze methode heeft bovendien het voordeel dat men tevens kan nagaan in hoeverre de verschillende factoren elkaar beïnvloeden, hetgeen bij variëren van slechts één factor tegelijk principieel onmogelijk is.

De toevallige fluctuaties maken iedere conclusie die men uit de waarnemingen trekt tot op zekere hoogte onzeker. Men moet daarom in principe aanvaarden dat men steeds een zeker risico loopt een onjuiste conclusie te trekken. Hiertegen is geen bezwaar, mits de proef zó wordt ingericht dat we door een juiste analyse kunnen vaststellen hoe groot dit risico is. Dan hebben we het ook in de hand dit risico door een juiste proefopzet binnen redelijke perken te houden.

Bij deze wijze van experimenteren speelt de wiskundige techniek van analyse en interpretatie een

---

[1]) R. A. Fisher, The design of experiments, Oliver and Boyd, Edinburgh 1935.

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

zeer belangrijke rol. Zij is ontleend aan de statistiek, zoals die rond de eeuwwisseling werd ontwikkeld door de Engelsen Galton en Pearson, en is in hoofdzaak gebaseerd op de kansrekening [2]). Vandaar dat deze nieuwe ideeën door statistici zijn ontwikkeld en ook heden ten dage nog voornamelijk worden beschreven in statistische leerboeken.

Naar mijn mening moeten zij in werkelijkheid echter worden gezien als een fundamentele wijziging in de grondslagen van de experimentele wetenschap. De experimentator was door de klassieke idealen van nauwkeurig waarnemen en slechts één factor tegelijk variëren in een nauwsluitend keurslijf gewrongen, waaruit hij door het werk van Fisher is bevrijd. Thans is een wiskundig gefundeerde, en dus in zekere zin exacte, behandeling mogelijk ook van die verschijnselen die voorheen buiten het kader der exacte wetenschap vielen omdat nauwkeurig en reproduceerbaar waarnemen principieel is uitgesloten. Daarmee is het domein van de toegepaste wetenschap aanzienlijk verbreed en verdiept. Geen wonder dat heden ten dage de statistiek een actieve rol speelt in vrijwel iedere tak van wetenschap.

Al is de statistische gedachtengang die daarbij wordt gevolgd steeds dezelfde, de methodes lopen sterk uiteen en moeten telkenmale worden aangepast bij de specifieke problemen en omstandigheden. In de landbouw, die ik reeds noemde, kan slechts één proef per jaar worden genomen, en hier zijn gecompliceerde en omvangrijke proefopzetten op zijn plaats. Lente en zomer bieden ons de gelegenheid de proef uit te voeren, in de herfst worden de waarnemingen geoogst, in de winter hebben we de tijd deze te analyseren en een nieuwe proef te ontwerpen.

In de elektromechanische industrie daarentegen treffen we machines aan die 1000 en meer produkten per uur voortbrengen. Op het aantal waarnemingen behoeft men niet te bezuinigen, maar de proeven moeten zo eenvoudig mogelijk worden gehouden, omdat men anders op organisatorische moeilijkheden stuit en de analyse te lange tijd vergt. Bij een dergelijk produktietempo heeft de technicus haast en hij zou het liefst reeds gisteren het antwoord weten op de proeven die hij vandaag neemt.

De chemische industrie, waar b.v. één charge per dag wordt verwerkt, staat tussen deze extremen in. Zuinigheid met waarnemingen is geboden omdat deze kostbaar zijn, en omdat een omvangrijke proef te lang zou duren.

Is het de medicus erom te doen twee geneesmiddelen te vergelijken, dan mogen noch de patiënt noch de behandelende geneesheer weten welk middel werd toegepast, ten einde te voorkomen dat hun oordeel over de bereikte resultaten door vooropgezette meningen wordt vertekend. Ook is het niet mogelijk op een willekeurig tijdstip waarnemingen te doen; de proef schrijdt voort in het tempo waarmee patiënten beschikbaar komen. Dit biedt echter het voordeel dat men de resultaten geleidelijk kan accumuleren en het experiment stoppen zodra een duidelijk antwoord op de gestelde vraag is verkregen.

In de psychologie weer zijn we er niet in de eerste plaats op uit om het effect van variaties in bepaalde factoren te bestuderen. Hier staan we voor heel andere problemen; men kan b.v. verschillende methodes bedenken om de menselijke intelligentie te meten, maar die intelligentie zelf kan men niet bepalen, en alleen door een onderlinge vergelijking van de verschillende meetmethodes kan men trachten uit te maken in hoeverre deze aan hun doel beantwoorden.

De socioloog is aangewezen op waarneming door middel van enquêtes; bij het verwerken en interpreteren van de verkregen antwoorden en de ontwikkeling van een efficiënte enquêtetechniek speelt de statistiek een rol.

Zo zou ik nog een tijd kunnen doorgaan, doch ik wil het hierbij laten en er thans toe overgaan met de lezer een blik te werpen in de gedachtenwereld waarin de statisticus zich dagelijks beweegt. Ik neem het voorbeeld dat hier het meest voor de hand ligt, te weten deze oratie, en oraties in het algemeen.

Men stelle zich voor dat we om de een of andere reden wensen te weten wat de gemiddelde lengte is van de woorden die in deze oratie voorkomen; onder lengte te verstaan het aantal letters per woord. Hoe kan die gemiddelde lengte het best worden bepaald?

Deze oratie bestaat uit een verzameling van 6000 tot 7000 woorden, en niemand zal verwachten dat ik deze alle heb nageteld. Het behoeft geen nader betoog dat men op grond van tellingen aan een beperkt aantal woorden tot een redelijk nauwkeurige bepaling van de gemiddelde lengte moet kunnen komen. Ter oriëntatie beginnen we met tellingen aan 200 woorden, willekeurig uit de tekst gegrepen, of, in statistische terminologie: aan een steekproef van 200 woorden. Het resultaat is weergegeven in *fig. 1* in de vorm van een zogenaamd histogram. Onder de 200 woorden werden er 34 aangetroffen met 2, 40 met 3, 34 met 4 letters, enz.; de grootste lengte, 18 letters, is 3 maal waargenomen. Deze 200 waar-

[2]) Zie b.v.: K. Pearson, The life, letters and labours of Francis Galton, Cambridge Univ. Press 1914 (deel I), 1924 (deel II), 1930 (deel IIIa, b).
E. S. Pearson, Karl Pearson, an appreciation of some aspects of his life and work, Cambridge Univ. Press 1938.

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

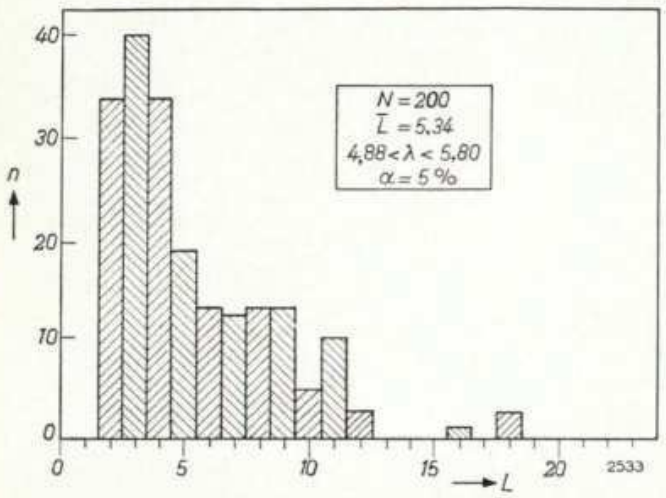


Fig. 1. Histogram van de getelde woordlengten, in een aselecte steekproef van 200 woorden. n = aantal keren dat de woordlengte L (= aantal letters per woord) gevonden is.

nemingen leveren een gemiddelde lengte

$$\bar{L} = 5{,}34 \text{ letters per woord.}$$

Deze waarde stemt natuurlijk niet exact overeen met de „ware" gemiddelde lengte λ die we zouden vinden door alle woorden na te tellen. Op grond van de spreiding in de waarnemingen, zoals die in fig. 1 tot uiting komt, kunnen voor deze onbekende parameter λ echter grenzen worden aangegeven. Er geldt:

$$4{,}88 < \lambda < 5{,}80 \text{ letters per woord,}$$

met een *betrouwbaarheid* van 95% of

met een *onbetrouwbaarheid* α van 5%.

Wanneer ik de verzekering geef dat λ tussen de vermelde grenzen ligt, loop ik een risico van 5% dat ik een onwaarheid vertel. De grenzen vormen een zg. *betrouwbaarheidsinterval*. De keuze van de betrouwbaarheid staat ons daarbij vrij; kiezen we een hogere waarde, b.v. 99%, dan wordt het interval breder. Voorts is de breedte van het interval omgekeerd evenredig met de wortel uit het aantal waarnemingen; wensen we het interval tot de helft te versmallen, dan zijn daartoe 4 keer zo veel waarnemingen nodig, dus tellingen aan 800 in plaats van 200 woorden.

Twee belangrijke vragen doen zich nu voor. Ten eerste: Hoe moeten de woorden die te zamen de steekproef vormen, worden aangewezen? En ten tweede: Welke nauwkeurigheid, of welke breedte van het betrouwbaarheidsinterval, moet worden nagestreefd, in andere woorden: hoe groot moet de steekproef zijn?

Op de eerste vraag geeft de statistiek een categorisch antwoord. Het onderzoek moet worden uitgevoerd aan een *aselecte* steekproef, d.w.z. een steekproef die wordt verkregen door de woorden in deze oratie van begin tot einde doorlopend te nummeren, en dan door een eerlijke loting de nummers aan te wijzen van de woorden die in de steekproef worden opgenomen.

Dit loten is een eenvoudige zaak, want een rechtgeaard statisticus loopt altijd met een loterij op zak. Een heel eenvoudig voorbeeld van zo'n loterij bestaat uit een glazen kolf met een holle stengel en gevuld met 10 houten kralen, 9 groene en 1 rode. Schudt men de kralen uit de kolf in de stengel, dan wijst de plaats van de rode kraal een nummer aan tussen 0 en 9. Door deze bewerking vele malen te herhalen, krijgt men een reeks toevalscijfers, dat wil zeggen cijfers van 0 tot 9 in volmaakt willekeurige volgorde. Groepen van vier toevalscijfers bijeen wijzen dan de nummers aan van de woorden die dienen te worden onderzocht; nummers hoger dan het aantal voorkomende woorden worden daarbij genegeerd.

Men zal wel begrijpen dat deze methode om een steekproef te nemen erg omslachtig is, en in het onderhavige geval overbodig. In onze taal wisselen lange en korte woorden elkaar gestadig af. Hoogstens kunnen we verwachten dat in het midden van een oratie in het vuur van het specifieke vakjargon iets meer lange woorden zullen voorkomen dan aan het begin of einde, doch een uitgesproken effect kan dit niet hebben. Wanneer we voor alle zekerheid op iedere pagina een of twee regels willekeurig aanwijzen en de woorden op die regels natellen, zullen we stellig een juist beeld van de gemiddelde woordlengte verkrijgen. Op deze wijze werd bij het construeren van fig. 1 te werk gegaan.

Een andere methode zou zijn, de oratie op een aantal willekeurige plaatsen met een priem te doorsteken, en daarna die woorden te nemen die men daarbij heeft getroffen. Dit is echter onjuist, want lange woorden hebben een grotere kans te worden geraakt dan korte. *Fig. 2*, waarvoor deze weg werd

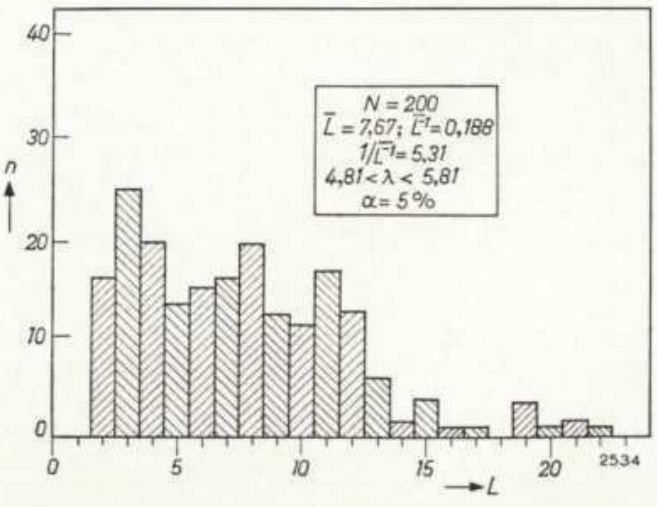


Fig. 2. Histogram van de lengten van 200 woorden, door „prikken" aangewezen.

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

Tabel I. Vergelijking van de gemiddelde woordlengten $\overline{L}$, bepaald volgens drie verschillende methodes. λ is de ware gemiddelde lengte.

Methode	$\overline{L}$ letters/woord	Betrouwbaarheidsinterval; $\alpha = 5\%$	Breedte van het betrouwbaarheidsinterval	Aantal tellingen, in totaal verricht
I: aselecte steekproef	5,34	$4{,}88 < \lambda < 5{,}80$	0,92	$200 \times 5{,}3 = 1060$
II: gepriemde steekproef	5,31	$4{,}81 < \lambda < 5{,}81$	1,00	$200 \times 7{,}7 = 1540$
III: quotiënt van gemiddeld aantal letters per regel en gemiddeld aantal woorden per regel	5,48	$5{,}22 < \lambda < 5{,}74$	0,52	$(7 \times 57{,}3) + (60 \times 10{,}5) = 1031$ *)
A	B	C	D	E

*) De lengte der regels in de oorspronkelijke uitgave van de oratie is niet dezelfde als in dit tijdschrift.

gevolgd, laat dit zeer duidelijk zien. De gemiddelde lengte bedraagt nu 7,67 letters per woord, aanzienlijk meer dan bij fig. 1. Toch kan ook op deze wijze een juiste uitkomst worden verkregen. De kans een woord te raken, is namelijk evenredig met de lengte van dat woord. Een statistische beschouwing die van dit gegeven gebruik maakt, leert ons dat we daarom het gemiddelde moeten berekenen van de reciproke woordlengte. De waarde van dit gemiddelde is 0,188, en door van dit bedrag nu weer het reciproke te nemen, verkrijgt men een waarde voor de werkelijke gemiddelde woordlengte:

$$\frac{1}{0{,}188} = 5{,}31 \text{ letters per woord,}$$

in fraaie overeenstemming met de uit fig. 1 gevonden waarde.

Deze methode vindt een praktische toepassing bij verkeersonderzoekingen, wanneer men de gemiddelde afstand wil weten die automobilisten per rit afleggen. Men houdt daartoe een willekeurige groep automobilisten op de weg aan en vraagt hun vanwaar ze komen en waarheen zij gaan. Daarbij is de kans dat een automobilist in de steekproef wordt opgenomen, evenredig met de lengte van de rit die hij onderneemt, en hier moet dus de zojuist beschreven rekenwijze worden toegepast.

Ten slotte is er nog een derde methode volgens welke we de gemiddelde woordlengte kunnen vinden, namelijk door het gemiddelde aantal letters en het gemiddelde aantal woorden te bepalen per volgedrukte regel, en het eerste gemiddelde door het laatste te delen. Het blijkt daarbij dat het aantal letters per regel verrassend constant is, zodat met weinig tellingen een bevredigende nauwkeurigheid kan worden bereikt. Het aantal woorden per regel is een zeer eenvoudige telling, en hier kan men zonder veel moeite tot een nauwkeurig resultaat komen door een groot aantal tellingen uit te voeren.

In *tabel I* zijn de drie besproken methodes met elkaar vergeleken. Kolom B geeft de gemiddelde woordlengte, kolom C het betrouwbaarheidsinterval, kolom D de breedte van dit interval, en kolom E het totale aantal tellingen dat werd uitgevoerd. De beide eerste methodes geven een interval van nagenoeg gelijke breedte, doch daar bij de tweede methode de gemiddelde woordlengte aanzienlijk groter is, moesten veel meer tellingen worden uitgevoerd. Methode II is dus beslist minder efficiënt dan methode I. Bij toepassing van de derde methode werden van 7 regels het aantal letters geteld, en van 60 regels het aantal woorden; te zamen waren dit 1031 tellingen, ongeveer hetzelfde aantal als met methode I. Doch het resulterende betrouwbaarheidsinterval is half zo breed; methode III geeft voor een zelfde aantal tellingen dus verreweg het nauwkeurigste resultaat. Zo stelt een statistische analyse ons in staat te beslissen welke methode van waarnemen de voorkeur verdient.

De tweede vraag, die betreffende de nauwkeurigheid die we bij ons onderzoek moeten nastreven, wordt door de statisticus altijd met een wedervraag beantwoord: Voor welk doel wilt U het resultaat gebruiken? Gaat het er, als hier, alleen om, demonstratiemateriaal voor een oratie te verzamelen, dan behoeft aan de nauwkeurigheid geen enkele eis te worden gesteld en zijn de hierboven beschreven gegevens ruimschoots voldoende. Zou men echter de gemiddelde woordlengte willen gebruiken als karakteristiek van de persoon van de schrijver, en zou men verschillende oraties op dit punt met elkaar willen vergelijken, dan staan de zaken geheel anders.

Op grond van tellingen (volgens de derde methode) aan verschillende oraties heb ik geen verschillen kunnen constateren. Dit is niet te verwonderen, want deze oraties waren alle geschreven in het Nederlands, en verschillen, zo deze bestaan, zijn

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

zeker gering. Zo ze bestaan, zijn veel grotere steekproeven vereist om ze te kunnen constateren.

Verlangen we een persoonlijk en karakteristiek kenmerk van de literaire produkten van verschillende hoogleraren, dan is de gemiddelde woordlengte dus ongeschikt. In de gemiddelde zinslengte, d.w.z. het gemiddelde aantal woorden per zin, kunnen we meer variatie verwachten. Dit kenmerk kan worden bepaald op een wijze analoog aan methode III, nl. door het produkt van het totale aantal gedrukte regels en het gemiddelde aantal woorden per regel te delen door het totale aantal zinnen. Op details ga ik niet verder in. Het resultaat van een onderzoek aan een 7-tal oraties was voor alle te zamen een gemiddelde zinslengte van ongeveer 25 woorden, en persoonlijke gemiddelde zinslengten die varieerden van 22 tot 32 woorden. Hier treden duidelijke verschillen aan het licht.

Deze beschouwingen zou men nog verder kunnen trachten te verdiepen. Ik vrees echter dat de lezer hier het geduld zal verliezen, omdat het hem wellicht zal voorkomen dat een studie van woord- en zinslengten slechts academische betekenis (in dit geval in letterlijke zin) heeft. Om de reële betekenis van de gegeven beschouwingen beter te doen uitkomen, wil ik daarom op het gekozen probleem een transformatie toepassen. Ik verander hoogleraren in machines. De woorden, door hoogleraren neergeschreven, transformeer ik in produkten, door deze machines voortgebracht, en de lengte van de woorden in een maat, kenmerkend voor de kwaliteit van dit produkt, b.v. een diameter.

Na deze drastische transformatie zien we ons nog steeds geplaatst voor dezelfde vragen. Al zijn de afmetingen van de produkten niet zo variabel als de lengten van woorden, toch stemmen zij onderling niet volmaakt overeen; er treedt in de massafabricage steeds een zekere variabiliteit op. Voorts is het aantal produkten in vele gevallen zó groot dat ze niet alle kunnen worden nagemeten, zodat we ook hier, evenals bij de woorden, met een steekproef tevreden moeten zijn.

Doch daarnaast merken we belangrijke verschillen op. Terwijl aan de gemiddelde woordlengte geen bepaalde eisen worden gesteld, zal voor de gemiddelde diameter in het algemeen een bepaalde waarde zijn voorgeschreven, en afwijkingen ten opzichte van deze waarde zullen ons leren in hoeverre een machine juist is ingesteld. Een ander verschil: de woorden in een stuk proza staan netjes op een rijtje, en lange en korte woorden wisselen elkaar met een zekere regelmaat af. De produkten die een machine produceert, liggen daarentegen op een hoop door elkaar, zodat voor het bepalen van de gemiddelde afmeting de methode III niet meer van toepassing is. Terwijl we verder in de gemiddelde woordlengte bij verschillende hoogleraren geen of hoogstens zeer geringe verschillen, en geen verandering in de loop der tijd, kunnen verwachten, zullen bij machines, die ieder apart moeten worden ingesteld, wel degelijk verschillen optreden, die bovendien door slijtage aan veranderingen op korte termijn onderhevig zijn. Een eenmalig uitgebreid onderzoek als dat van fig. 1 en 2 is bij de machines niet op zijn plaats; hier dienen we met kleine steekproeven een regelmatige controle uit te oefenen, ten einde tijdig te kunnen ingrijpen wanneer de instelling te veel verloopt.

Ook lopen de machines niet ongelimiteerd door. Van tijd tot tijd treden storingen op, of er moet worden gestopt voor bijstellen of aanvullen van materiaal. De lengten van zinnen kunnen we dan getransformeerd denken in de tijdsintervallen gedurende welke de machines zonder onderbreking doorlopen. Doch terwijl in oraties korte zinnen de duidelijkheid ten goede komen, en te lange zinnen dienen te worden vermeden, zijn bij de machines juist lange looptijden gewenst en zullen die machines die te korte zinnen prevelen, voor revisie naar de werkplaats worden verwezen. Dus ook hier weer een verschil.

Ten slotte kan men nu nog verder gaan en de vraag stellen, in hoeverre verschillen in de kwaliteit van de produkten, vervaardigd met verschillende machines, te wijten zijn aan de machines zelf, aan de arbeiders die de machines bedienen, en b.v. aan de partijen grondstof die worden verwerkt. Een antwoord op deze en dergelijke vragen kan het best door een experiment worden geleverd, b.v. volgens een zg. Latijns vierkant, als weergegeven in *fig. 3*. Hierbij kiest men b.v. 4 machines, 4 arbeiders en

	A	B	C	D
I	2	4	1	3
II	3	1	2	4
III	4	2	3	1
IV	1	3	4	2

2535

Fig. 3. Proefopzet volgens een Latijns vierkant, om de invloed van machines, arbeiders en grondstoffen op de kwaliteit van een produkt na te gaan.
A, B, C, D machines,
I, II, III, IV arbeiders,
1, 2, 3, 4 partijen grondstof.

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

4 partijen grondstof. Elke partij grondstof wordt in 4 porties verdeeld, en de proef wordt zo ingericht dat iedere partij één maal wordt verwerkt op ieder van de 4 machines en één maal door ieder van de 4 arbeiders, terwijl ook iedere arbeider één maal iedere machine bedient. Door een doelmatige analyse kan men dan na afloop van de proef de invloed van de machine, van de arbeider en van de grondstof afzonderlijk bepalen — een typisch voorbeeld van de wijze waarop de statisticus verscheidene factoren in één proef dooreenvlecht. De opzet volgens het Latijnse vierkant maakt het daarbij mogelijk, met een minimum aan waarnemingen toe te komen.

Het zal de lezer duidelijk zijn dat bij een studie van woord- of zinslengten dergelijke experimenten niet in aanmerking komen. Men zou b.v. de vraag kunnen stellen, in hoeverre de gemiddelde zinslengte die — zoals we hierboven zagen — een kenmerk is voor de individuele hoogleraar, ook nog afhangt van het onderwerp waarover hij schrijft. Doch een proef waarbij men een aantal hoogleraren zou vragen, ieder een aantal oraties te schrijven over verschillende onderwerpen, behoort niet tot de mogelijkheden.

De ingrijpende transformatie die ik heb toegepast, demonstreert aldus wat ik reeds eerder heb onderstreept, namelijk dat het statistische karakter van de problemen er niet door wordt aangetast, doch dat de vragen waarop we een antwoord zoeken en de omstandigheden waaronder we moeten werken, markante wijzigingen ondergaan, zodat we telkens verschillende wegen moeten bewandelen om tot een bevredigende oplossing te geraken.

Ik wil thans nog even stilstaan bij de vraag in welk opzicht de toegepaste statistiek verschilt van de theoretische of mathematische statistiek. Daartoe is des te meer aanleiding, omdat de beoefenaars van deze beide takken van de statistische wetenschap vaak zeer ver van elkaar af staan. Een omvangrijk tijdschrift als het in Amerika verschijnende „Annals of Mathematical Statistics" bevat b.v. een veelheid van artikelen die voor de meeste toegepaste-statistici ontoegankelijk zijn en hun het gevoel geven dat hier een speciaal soort wiskunde wordt bedreven om der wille van de wiskunde, doch zonder enig verband met de praktische problemen van alle dag.

Op grond van een telling aan 200 woorden werd hierboven een betrouwbaarheidsinterval geconstrueerd voor de gemiddelde woordlengte λ, met een onbetrouwbaarheid van $\alpha = 5\%$. Het draait er nu om, welke betekenis aan deze onbetrouwbaarheid moet worden toegekend. Voor een toegepaste-statisticus is alleen de orde van grootte van belang. Voor hem betekent een onbetrouwbaarheid van 5% dat het risico op een onjuiste conclusie van de orde van 5% is; zou het werkelijke risico niet 5%, doch 2% of 10% zijn, dan is dat geen ernstig bezwaar.

De mathemaat daarentegen verlangt dat bij een onbetrouwbaarheid van 5% het risico exact 5% is; of, als dit wiskundig niet realiseerbaar is, dat dan 5% een bovengrens geeft van het risico; dat het risico dus stellig niet groter is dan 5%.

Aan de ene kant heeft de statistiek aan dit streven naar exactheid zeer veel te danken. Het heeft b.v. geleid tot de ontwikkeling van de elegante en soms zeer eenvoudige „verdelingsvrije" methodes, waartoe Van Dantzig en zijn leerlingen in Amsterdam zoveel hebben bijgedragen [3]).

Doch aan de andere kant heeft het streven naar te grote exactheid praktische bezwaren. Het leidt lang niet altijd tot vereenvoudigingen; integendeel, het leidt tot een veelheid van methodes en complicaties in formules, die de doelmatige toepassing van statistische methodes eerder belemmeren dan bevorderen.

De vraag kan hier worden gesteld, wat dan wel de werkelijke waarde van deze methodes is. Naar mijn opvatting is deze niet gelegen in de exactheid van de risico's, aan conclusies verbonden. De statistische methodes verschaffen ons internationaal aanvaarde normen voor het beantwoorden van vragen die bij alle speurwerk voorkomen. De internationale aanvaarding van uniforme werkwijzen bepaalt de werkelijke waarde van de statistische methodiek. Zij leidt tot een economische formulering van de resultaten en van de interpretatie van wetenschappelijk onderzoek. Nu wordt ongetwijfeld de internationale erkenning ten zeerste bevorderd doordat de risico's bij een statistische werkwijze duidelijk vastliggen.

Doch daarnaast is eenvoud en uniformiteit van de methodes en formules evenzeer essentieel. Wanneer het streven naar een te grote exactheid leidt tot een veelheid van methodes en een grotere gecompliceerdheid van de formules, gaat daardoor de uniformiteit teloor, en het kan daarom aanbeveling verdienen van de exactheid wat prijs te geven.

Dit verschil in opvatting tussen de theoreticus en de practicus grijpt zeer ver door. Wanneer we door middel van een Latijns vierkant (fig. 3) de invloed van mensen, machines en grondstoffen op de kwaliteit van de produkten trachten te scheiden, ligt aan dit experiment de onderstelling ten grondslag dat deze drie factoren onafhankelijk van elkaar

[3]) Zie b.v. de bibliografie in Statistica neerlandica **13**, 432, 1959 (no. 4). — „Verdelingsvrij" noemt men methodes waarbij men zich vrij heeft gemaakt van de onderstelling dat men steeds te maken heeft met foutenverdelingen volgens Gauss.

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

werken. We onderstellen b.v. dat de verschillen tussen arbeiders voor iedere combinatie van grondstoffen en machines steeds dezelfde zijn. Is daarentegen iedere arbeider speciaal gewend aan zijn eigen machine, dan is een verwisseling van arbeiders en machines niet zonder meer toelaatbaar en is het Latijnse vierkant niet de juiste proefopzet.

Aan iedere statistische proefopzet ligt dan ook een *model* ten grondslag; d.w.z. een wiskundige formule welke aangeeft op welke wijze de factoren die worden gevarieerd de uitkomst beïnvloeden. De strenge theoreticus eist nu dat dit model volledig vastligt vóór de proef wordt uitgevoerd, en hij staat niet toe dat het model op grond van de waarnemingsresultaten wordt gewijzigd; want bij een dergelijke aanpassing achteraf zijn de risico's, aan de statistische conclusies verbonden, niet meer exact te becijferen en zeker groter dan zonder deze aanpassing. Dit staat de mathemaat niet toe.

Doch dit zou hierop neerkomen dat statistische methodes alleen dan bij experimenten kunnen worden toegepast indien reeds tevoren bekend is wat er uit de proef zal komen, en indien het doel van de proef uitsluitend bestaat in het numeriek vastleggen van de in het model voorkomende constanten. Dit standpunt kan mijns inziens nooit door de experimentator worden aanvaard. Doel van proeven is in vele gevallen het exploreren van nieuwe gebieden; juist die experimenten zijn het waardevolst die onverwachte resultaten opleveren. Indien de statistische theoreticus van deze proeven zijn handen aftrekt, zal de experimentator van zijn kant weinig belangstelling hebben voor de statistiek.

Een andere wijze waarop men tracht de keuze van een onbetrouwbaarheid te omzeilen, is door de problemen in economische zin te interpreteren. Dan wordt gesteld dat aan het einde van een onderzoek steeds een beslissing moet worden genomen; een steekproefonderzoek naar de kwaliteit van een partij produkten eindigt b.v. in een beslissing, de partij goed of af te keuren. Statistisch beschouwd, loopt men steeds enig risico een onjuiste beslissing te nemen, d.w.z. een goede partij af of een slechte partij goed te keuren. Deze risico's kunnen echter worden verkleind door een grotere steekproef te onderzoeken. Kent men nu de economische schade die ten gevolge van onjuiste beslissingen optreedt, dan kan men het schaderisico afwegen tegen de kosten van het onderzoek, en de omvang van het onderzoek zó bepalen dat de totale kosten gemiddeld zo klein mogelijk zijn.

Doch deze weg voert tot complicaties zonder einde. De kosten verbonden aan onjuiste beslissingen zijn vaak moeilijk te bepalen en in hoge mate onzeker. Gaat het b.v. om onderdelen die voor verdere produktie bestemd zijn, dan hangen deze kosten sterk van de beschikbare voorraad af. Is er voldoende voorraad, dan kunnen we zonder bezwaar een slechte of twijfelachtige partij weigeren, doch is de voorraad nagenoeg uitgeput, dan kan een dergelijke weigering betekenen dat we binnen afzienbare tijd onze eigen produktie stil moeten leggen bij gebrek aan materiaal. Zo kan de schade ten gevolge van een onjuiste beslissing in korte tijd van gering in zeer groot verkeren en omgekeerd.

Wanneer een leverancier een partij gerede produkten aan een steekproefkeuring onderwerpt, doet hij dit onder meer om te voorkomen dat hij door het afleveren van slechte partijen zijn goede naam zal schaden. Doch het bepalen van de economische waarde van een goede naam en de daaraan toegebrachte schade kan niet veel meer zijn dan een gissing.

Verder moet men weten wat er gebeurt met afgekeurde partijen. Deze kunnen b.v. worden teruggestuurd naar de leverancier, of aan een volledige keuring worden onderworpen, of worden verkocht tegen gereduceerde prijs, of worden afgeschreven als volledig verlies. Het maakt daarbij verschil of we de kosten beschouwen van het standpunt van de afnemer, of van de producent, of van beiden te zamen.

Het conflict tussen theorie en praktijk tekent zich hier andermaal duidelijk af. Wanneer in een steekproef van 100 stuks 5 stuks, of 5%, ondeugdelijke produkten worden gevonden, kan met 95% betrouwbaarheid worden vastgesteld dat in de partij waaruit die steekproef is genomen ten minste 1,9% en ten hoogste 10,7 %ondeugdelijke produkten voorkomen. Dit is een zuiver statistische uitspraak, die met behulp van een elementaire tabel tot stand komt, en die een ieder vrijlaat op grond van dit gegeven een rationele gedragslijn te bepalen. Zodra we echter proberen deze rationele gedragslijn nauwkeuriger wiskundig te funderen, staan we niet meer voor één situatie maar voor een veelheid van situaties en raken we spoedig verzeild in een doolhof van theorieën, waarin alleen een geschoold theoreticus de weg nog weet te vinden. Deze theorieën kunnen in specifieke gevallen met succes worden toegepast, doch zij missen de algemene en brede toepasbaarheid van het betrouwbaarheidsinterval.

Tussen deze klippen moet de toegepaste-statisticus door zeilen. Uitgangspunt dient daarbij te zijn dat de statistiek een dienende functie heeft te vervullen in de experimentele wetenschap.

De experimentator bouwt steeds voort op zijn ervaring en intuïtie, en dit is naar mijn mening een

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

essentieel kenmerk van alle experimentele onderzoek. Daarbij hebben we te aanvaarden dat ervaring en intuïtie vage begrippen zijn, die zich niet in wiskundige formules en numerieke constanten laten vangen.

Wanneer de exacte formulering van statistische theorieën te ver wordt doorgedreven, moeten deze vage begrippen noodzakelijkerwijs door exacte wiskundige postulaten worden vervangen. Dit kan ongetwijfeld tot interessante theorieën leiden, doch wat de toepassing betreft, zullen dit, vrees ik, veelal steriele theorieën blijken te zijn.

De toegepaste-statisticus moet daarom juist de ervaring en intuïtie van de experimentator als basis aanvaarden; zij het dat daarbij steeds een kritische instelling gewenst is. Want ervaring en vooroordeel lopen vaak dooreen en zijn moeilijk te scheiden; en waar vooroordeel wordt vermoed, is een verificatie gewenst.

Wordt een statisticus bij de oplossing van een praktisch probleem geraadpleegd, dan is zijn eerste taak, door een gesprek met de opdrachtgever uit te vinden wat goed gefundeerde ervaring is, en waar misschien vooroordelen zijn binnengeslopen. Ook bij de interpretatie van het waarnemingsmateriaal is een voortdurende wisselwerking tussen statisticus en experimentator noodzakelijk. Wanneer de experimentator op grond van de waarnemingen zijn inzichten in de aard der verschijnselen wijzigt, moet de statisticus zijn model daarbij aanpassen. Doch het is goed dat deze laatste zich van de gevaren van deze procedure bewust is en hiertegen zonodig waarschuwt. Aldus gehanteerd, wordt de toegepaste statistiek een boeiend en waardevol hoofdstuk uit de experimentele wetenschap.

LITERATUUR

Enige publikaties van de schrijver over de hier geschetste ontwikkeling van de toepassing der statistiek:

Beispiele zur Anwendung statistischer Untersuchungsmethoden in der Industrie, Mitt. Bl. math. Stat. **5**, 211-229, 1953.

De betekenis van de statistiek voor de ontwikkeling van de experimentele wetenschap, Sigma **1**, 55-58, 1955.

Naar efficiënte experimenten, Statistica neerl. **9**, 7-25,1955.

Experimental design in industry, Biometrics **11**, 257-286, 1955.

Infusing statistics into industry, Bull. Inst. Intern. Stat. **35**, 433-443, 1957.

Statistiek en experiment, Statistica neerl. **12**, 119-130, 1958.

De recente ontwikkeling in proefopzetten met kwantitatieve factoren, Statistica neerl. **12**, 201-212, 1958.

Samenvatting. In sommige, thans zeer belangrijke gebieden van onderzoek, zoals de landbouw, zijn geen „exacte" waarnemingen mogelijk en moet de invloed van verscheidene factoren tegelijk worden beschouwd. Dit heeft geleid tot het ontwikkelen van proefopzetten, aangepast bij de statistische analysemethodes die op de proefuitkomsten moeten worden toegepast (R. A. Fisher). In deze oratie, gehouden aan de Technische Hogeschool te Eindhoven, betoogt de schrijver dat het invoeren van zulk een werkwijze thans tot een fundamentele wijziging in de experimentele wetenschap in het algemeen leidt. Vraagstelling en methodiek hangen daarbij nog af van het gebied van onderzoek, zoals landbouw, geneeskunde, sociologie, diverse takken van industrie, enz. Ter illustratie van de gedachtenwereld der statistici bekijkt de schrijver de gemiddelde woordlengte en zinslengte in zijn eigen en in andere oraties, en vervolgens de kwaliteit van produkten, vervaardigd door een reeks machines. Men ziet hierbij punten van overeenkomst, maar ook verschillen, met name in omstandigheden (b.v. variatie in de tijd), in wenselijkheden (b.v. lange „zinnen") en in mogelijkheden (onderzoek van gecombineerde invloeden, met behulp van een proef volgens een Latijns vierkant). Tot slot beschouwt de schrijver nog nader het verschil tussen toegepaste en theoretische statistiek. De laatste is o.a. van belang om de internationale aanvaarding van uniforme statistische werkwijzen te bevorderen. In tegenstelling echter met de strenge statistica moet de toegepaste-statisticus zich de vrijheid kunnen veroorloven, het model dat hij aan een proefopzet ten grondslag heeft gelegd (d.w.z. de onderstelde wijze waarop de te variëren factoren de uitkomst zullen beïnvloeden), alsnog te wijzigen bij het interpreteren van proefuitkomsten — ook al is dan de betrouwbaarheid der conclusies niet meer exact te becijferen. Ervaring en intuïtie moeten de toegepaste-statisticus helpen, om de experimentele wetenschap de beste diensten te kunnen bewijzen.

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

GOLFPIJPAPPARATUUR VOOR 2 mm GOLFLENGTE,

I. ONDERDELEN

door C. W. van ES, M. GEVERS en F. C. de RONDE.

621.372.8

Millimetergolven zijn een belangrijk hulpmiddel bij het moderne onderzoek aan gasplasma's en aan vaste stoffen, o.a. halfgeleiders. Er bestaat derhalve behoefte aan apparatuur voor het meten van frequentie, vermogen, absorptie, faze en reflexiecoëfficiënt bij deze microgolven. Hieronder volgt als deel I een overzicht van de bij Philips ontwikkelde apparatuur voor golven van 2 mm. Deels is deze afgeleid uit de bestaande apparatuur voor langere golven door evenredige verkleining van de afmetingen (waarbij echter vele moeilijkheden onevenredig sterk toenemen!), deels ook komen geheel nieuwe constructies ter sprake. In een later volgend deel II zullen enige meetopstellingen worden behandeld.

De millimetergolftechniek staat tegenwoordig sterk in de belangstelling, zowel uit algemeen wetenschappelijk oogpunt als in verband met de ontwikkeling van technische toepassingen. De voornaamste takken van wetenschap waarvoor de millimetergolftechniek van belang is, zijn de plasmafysica, de gasspectroscopie en het onderzoek van de vaste stof.

In de plasmafysica is men geïnteresseerd in de elektronendichtheid en de temperatuur van gasplasma's. De elektronendichtheid is af te leiden uit de voortplantingseigenschappen van mm-golven die men door het plasma laat gaan. De temperatuur is o.a. te bepalen door het vermogen dat het plasma in een bepaalde mm-golfband uitstraalt, te vergelijken met dat van een stralingsbron van bekende sterkte (ruisgenerator) in dezelfde golfband. Dit soort metingen is in het bijzonder van belang bij de pogingen ter verwezenlijking van kernfusie [1]).

De gasspectroscopie houdt zich bezig met o.a. het onderzoek van rotatiespectra van moleculen. Een gasspectrometer bestaat in principe uit een microgolfgenerator, een vacuümdichte golfpijp die met het te onderzoeken gas is gevuld, en een detector. Men bepaalt de absorptie die bij bepaalde frequenties optreedt [2]).

Een derde toepassing ligt op het gebied van het onderzoek van de vaste stof. Valt een elektromagnetische golf op een vaste stof terwijl er loodrecht op het elektrische veld een magnetostatisch veld aanwezig is, dan kan bij bepaalde frequenties cyclotronresonantie optreden, o.a. bij germanium en silicium [3]). Ook bij onderzoekingen aan supergeleiding wordt van mm-golven gebruik gemaakt [4]).

Voor onderzoekingen van deze aard moet men beschikken over middelen om mm-golven op te wekken, om ze voort te geleiden en om er metingen mee te doen. Wat het opwekken betreft, er zijn goede resultaten bereikt met reflexieklystrons voor 4 en 2,5 mm golflengte [5]). Wij zijn uitgegaan van het reflexieklystron type DX 151 voor 4 mm, welke golflengte door middel van een frequentieverdubbelaar (puntcontactdiode) op 2 mm wordt gebracht.

Ter voortgeleiding van de 2-mm-golven worden golfpijpen met in de meeste gevallen rechthoekige doorsnede gebruikt (0,83 bij 1,66 mm).

De metingen komen bij bovengenoemde onderzoekingen gewoonlijk neer op het meten van frequentie, vermogen, absorptie, faze en spanningsreflexiecoëfficiënt. Meetonderdelen voor deze grootheden in het cm-gebied zijn een tiental jaren geleden in dit tijdschrift en elders beschreven [6]). Achtereenvolgens zijn complete series onderdelen voor 3 cm, 8 mm en 4 mm ontwikkeld. Reeds bij deze laatste golflengte is uiterste zorgvuldigheid nodig om de afmetingen binnen de vereiste toleranties te houden. Niettemin is het nu ook nog gelukt, met dezelfde relatieve toleranties een serie onderdelen voor 2 mm te ontwikkelen [7]); hiervan zullen in dit artikel de voornaamste de revue passeren. Sommige zijn verkleinde uitvoeringen van analoge onderdelen voor langere golven; andere daarentegen wijken in mechanisch

---

[1]) M. A. Heald, Microwave measurements in controlled fusion research, Nat. Conv. Rec. Inst. Rad. Engrs. **6**, no. 9, 14-18, 1958.

[2]) W. C. King en W. Gordy, One-to-two millimeter wave spectroscopy, Phys. Rev. **93**, 407-412, 1954.
M. Cowan en W. Gordy, Further extension of microwave spectroscopy in the submillimeter wave region, Phys. Rev. **104**, 551-552, 1956.

[3]) C. J. Rauch, J. J. Stickler, H. J. Zeiger en G. S. Heller, Millimeter cyclotron resonance in silicon, Phys. Rev. Letters **4**, 64-66, 1960 (no. 2).

[4]) M. A. Biondi en M. P. Garfunkel, Millimeter wave absorption in superconducting aluminum, Phys. Rev. **116**, 853-861, 1959 (no. 4).

[5]) B. B. van Iperen, Reflexieklystrons voor 4 en 2,5 mm golflengte, Philips techn. T. **21**, 225-232, 1959 (no. 8/9).
Voor een andere methode ter opwekking van mm-golven, zie: M. Yéou-Ta, Carcinotrons du type O fonctionnant sur une longueur d'onde de 2 mm, Onde électr. **39**, 789-794, 1959 (no. 391).

[6]) A. E. Pannenborg, Een meetopstelling voor golfpijpsystemen, Philips techn. T. **12**, 15-25, 1950.
A. E. Pannenborg, Some aspects of waveguide technique, Communic. News **11**, 65-75, 1950.

[7]) Bijzondere dank zijn wij verschuldigd aan de instrumentmaker J. van Ostade voor zijn bijdragen tot deze ontwikkeling.

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

opzicht van de bekende constructies af, en drie zijn volkomen nieuw, te weten: de zg. *PIN*-modulator, de variabele impedantie en de variabele rotatierichtkoppeling.

Alle onderdelen voor 4 en 2 mm zijn voorzien van de aanstonds te bespreken klauwflenzen, waarmee hun golfpijpen op elkaar worden aangesloten. De constructie is zodanig dat de opstelling bijzonder compact kan zijn en gemakkelijk gewijzigd kan worden.

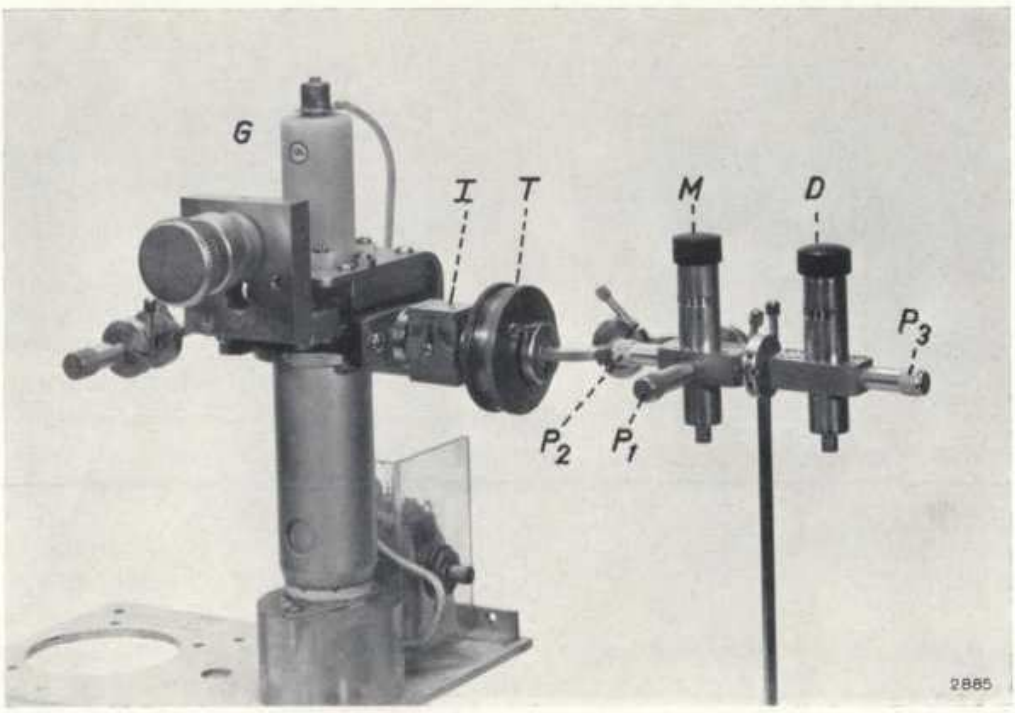
Opwekken, detecteren en moduleren van 2-mm-golven

De generator, de frequentievermenigvuldiger en de detector

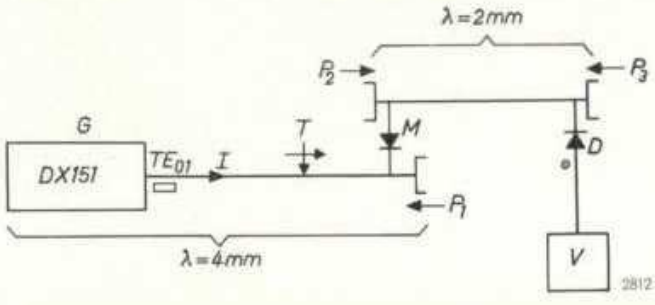
Zoals boven al is vermeld, worden in onze apparatuur de 2-mm-golven opgewekt door frequentieverdubbeling van de 4-mm-golven van een reflexieklystron DX 151. Tussen deze buis en de frequentievermenigvuldiger zijn een richtingsisolator *I* en een aanpasser *T* opgenomen (*fig. 1*). De richtingsisolator belet terugwerking van de belasting op de generator, waarvan de frequentie en het vermogen anders vrij sterk met de belasting zouden variëren. Het principe van deze richtingsisolator berust op gyromagnetische resonantie [8]). In combinatie met een verplaatsbare kortsluitzuiger P_1 zorgt de aanpasser ervoor dat vrijwel het gehele vermogen dat de buis levert, in de frequentievermenigvuldiger terechtkomt. Op de constructie van de hier gebruikte aanpassers komen wij nog terug.

De frequentievermenigvuldiger bestaat uit een puntcontactdiode, die zich bevindt op de kruising van de 4-mm-golfpijp *1* en de 2-mm-golfpijp *2* (*fig. 2*). Door deze beide pijpen heen steekt een contactdraad *3* van wolfraam, die samen met een siliciumkristal *4* de puntcontactdiode vormt. De contactdraad is van onderen bevestigd op een geïsoleerde pen *5*. Het andere eind is door etsing voorzien van een fijne punt. Het schijfje silicium, dat door middel van een differentiaalschroef in verticale richting fijn verstelbaar is, wordt in aanraking met de contactdraad gebracht. Het gedeelte van de contactdraad dat zich binnen de beide golfpijpen

[8]) H. G. Beljers, Richtingsisolatoren voor millimetergolven, Philips techn. T. **22**, 16-21, 1960 (no. 1).



b



a

Fig. 1. Schema (*a*) en foto (*b*) van een opstelling voor het opwekken van 2-mm-golven. *G* generator van 4-mm-golven (reflexieklystron DX 151). *I* richtingsisolator. *T* aanpasser. P_1, P_2, P_3 verplaatsbare kortsluitzuigers. *M* frequentievermenigvuldiger. *D* detector voor 2-mm-golven, met millivoltmeter *V*.

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

bevindt, fungeert als antenne. De weerstand (en ook de capaciteit) van de diode hangt van de aangelegde spanning af [9]). Deze niet-lineariteit heeft tot gevolg dat in de stroom die de invallende 4-mm-golven in de antenne opwekken, een component met de dubbele frequentie ontstaat. Deze veroorzaakt een 2-mm-golf in de bovenste golfpijp. *Fig. 3* toont het uiterlijk van de frequentievermenigvuldiger.

Om te controleren of de apparatuur tot aan de frequentievermenigvuldiger in orde is, kan men deze laatste tijdelijk als detector voor de 4-mm-golf laten fungeren. Daartoe sluit men een gelijkspanningsmeter (b.v. de elektronische millivoltmeter GM 6020) aan tussen de centrale pen *5* en de massa — d.w.z. parallel met de puntcontactdiode. Wordt hier een bevredigende uitslag verkregen, dan sluit men op de 2-mm-golfpijp een kristaldetector *D* aan (fig. 1) voor het detecteren van de 2-mm-golf. Deze detector is nagenoeg van dezelfde constructie als de frequentievermenigvuldiger, doch uiteraard zonder 4-mm-golfpijp.

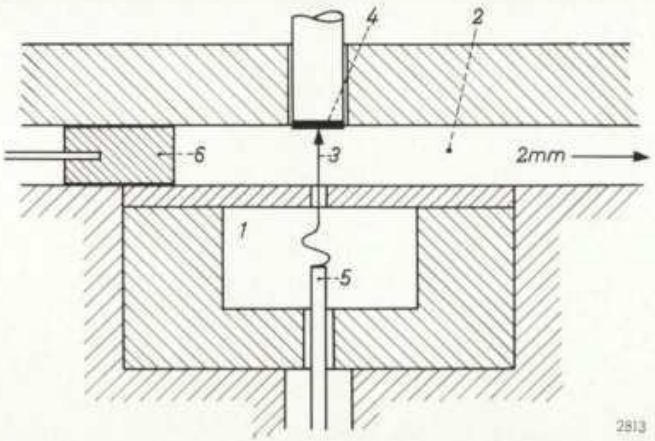


Fig. 2. Doorsnede van de frequentievermenigvuldiger. *1* is de 4-mm golfpijp, *2* de 2-mm-golfpijp. *3* contactdraad en *4* siliciumkristal, die samen een puntcontactdiode vormen. *5* geïsoleerde pen, waarop de contactdraad is bevestigd. *6* kortsluitzuiger in de 2-mm-golfpijp (P_2 in fig. 1).

De slingerschroefaanpasser

Zowel bij de frequentievermenigvuldiger als bij de 2-mm-detector geschiedt de aanpassing door middel van kortsluitzuigers (P_1, P_2 en P_3 in fig. 1), in combinatie met een aanpasser van bijzondere constructie. Voor langere golven gebruikt men gewoonlijk een zg. schuivende schroefaanpasser. Deze bestaat uit een metalen pen *1* (*fig. 4a*), die dieper of minder diep in de golfpijp *2* kan worden geschroefd en die tevens in de lengterichting van de pijp — die daartoe van een spleet is voorzien — over een afstand van ca. $\frac{3}{4}\lambda_g$ verschuifbaar is; λ_g, de golflengte *in* de golfpijp, is groter dan de bijbehorende golflengte λ in de vrije ruimte.

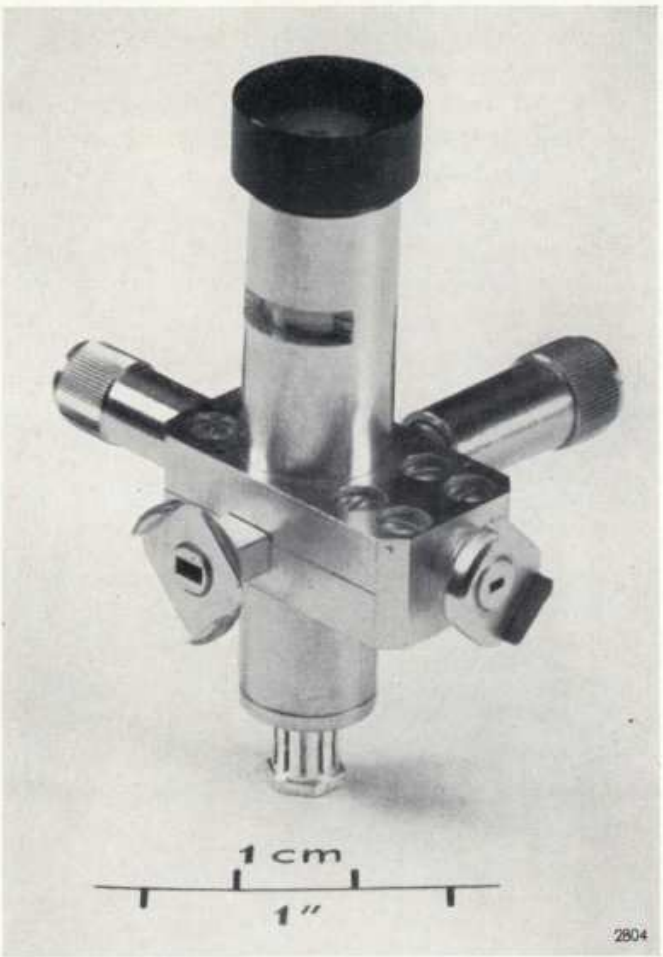


Fig. 3. De frequentievermenigvuldiger. Vooraan links de aansluiting van de 4-mm-, rechts die van de 2-mm-golfpijp; aan de tegenoverliggende armen de instelknoppen van de kortsluitzuigers. In de verticale arm bevindt zich de puntcontactdiode, met bovenaan de instelknop en onderaan de coaxiale aansluiting voor de millivoltmeter.
Het conversieverlies bedraagt 15 tot 20 dB.

Het verband tussen λ_g en λ is als volgt (zie het eerste in [6]) aangehaalde artikel, blz. 17, formule (2)):

$$\frac{1}{\lambda^2} = \frac{1}{\lambda_g^2} + \frac{1}{\lambda_c^2}.$$

Hierin is λ_c de grensgolflengte (index c van cut-off). Voor de trillingswijze die in de golfpijp wordt gebruikt — de TE_{01}-modus — is λ_c gelijk aan 2 maal de breedte a van de rechthoekige golfpijp. Voor $\lambda = 2{,}00$ mm en $\lambda_c = 2a = 3{,}32$ mm is $\lambda_g = 2{,}51$ mm.

Met de diepte waarover de pen in de golfpijp steekt, regelt men in hoofdzaak de mate waarin de pen reflecteert, en door de pen te verschuiven, varieert men de faze van de gereflecteerde golf.

[9]) H. C. Torrey en Ch. A. Whitmer, Crystal rectifiers, M.I.T. Radiation Lab. Series deel 15, McGraw-Hill, New York 1948, in het bijzonder blz. 97-107, Rectification at high frequencies.
R. S. Ohl, P. P. Budenstein en C. A. Burrus, Improved diode for the harmonic generation of millimeter and submillimeter waves, Rev. sci. Instr. **30**, 765-774, 1959 (no. 9).

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

Reflexies die in de apparatuur optreden, kan men dus opheffen door met behulp van een schuivende schroefaanpasser een even grote, doch in tegenfaze verkerende reflexie op te wekken. Op deze wijze verkrijgt men een lopende golf.

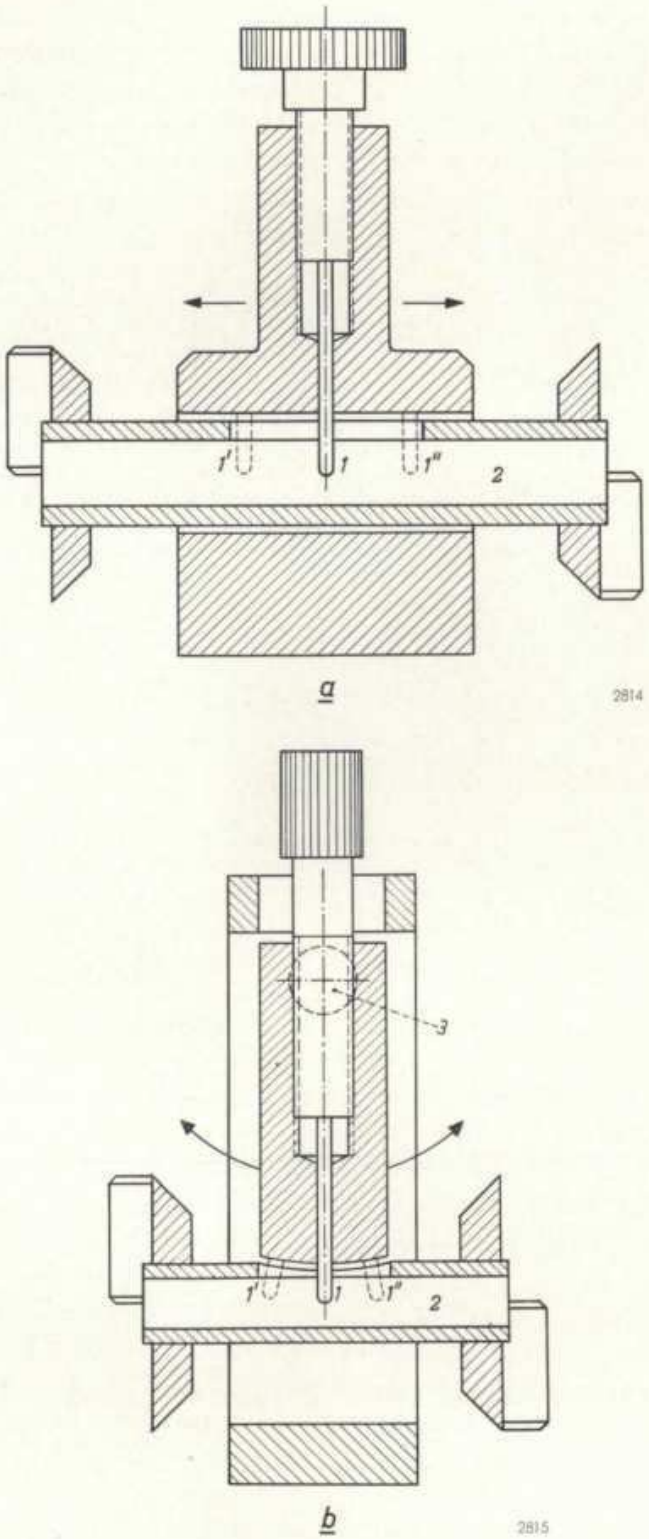


Fig. 4. Schematische voorstelling van schroefaanpassers. *a*) Schuivende schroefaanpasser. De pen *1* kan dieper of minder diep in de golfpijp *2* worden geschroefd en is in de lengterichting verschuifbaar tussen de uiterste standen *1'* en *1''*. *b*) Slingerschroefaanpasser. De pen *1* is ook hier in en uit te schroeven, maar, in plaats van verschuifbaar, draaibaar om de as *3*. De uiterste standen zijn weer *1'* en *1''*.

Bij de schroefaanpasser voor 2 mm is een nieuwe constructie toegepast. De pen is daar niet verschuifbaar, maar om een as *3* (fig. 4*b*) draaibaar, zodat hij een slingerbeweging kan maken; daarom spreken wij van slingerschroefaanpasser. In het bijzonder voor mm-golven heeft deze constructie mechanische en elektrische voordelen:

1) Het bezwaar van de schuivende schroefaanpasser dat de pen bij het schuiven door kleine oneffenheden enigszins op-en-neer beweegt, is hier geheel vermeden; de wrijving is dus kleiner en de instelling soepeler.
2) De axiale lengte, van flens tot flens, is beperkt kunnen worden tot 12 mm; daardoor veroorzaakt de slingerschroefaanpasser bijzonder weinig verzwakking (niet meer dan 0,1 dB).

Ogenschijnlijk is het een bezwaar dat bij het draaien van de pen om de as *3* niet alleen de plaats, maar tevens de diepte van de pen in de golfpijp varieert, zodat met de faze tevens de amplitude van de gereflecteerde golf een weinig verandert. Dit effect blijkt echter zo klein te zijn dat men er in de praktijk geen last van heeft.

Fig. 5 toont het uiterlijk van de slingerschroefaanpasser.

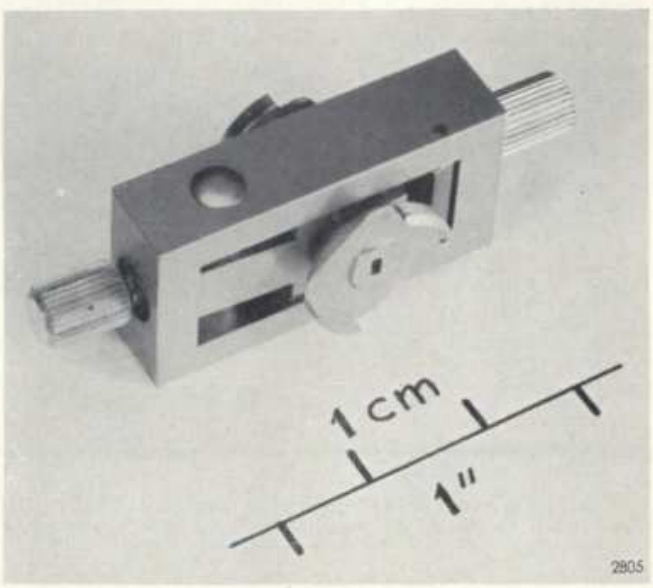


Fig. 5. Slingerschroefaanpasser voor 2 mm golflengte. Links de knop waarmee de pen dieper of minder diep in de golfpijp wordt gedraaid, rechts de knop waarmee men zijn plaats varieert (draaiing om de as *3* in fig. 4*b*). De slingerschroefaanpasser kan aanpassing tot stand brengen bij alle in de praktijk voorkomende gevallen. De verzwakking bedraagt niet meer dan 0,1 dB.

Modulatiemethodes

Bij een ingangsvermogen van b.v. 100 mW levert de bovengenoemde frequentievermenigvuldiger een 2-mm-vermogen van ten hoogste ca. 2 mW. Voor het detecteren van de 2-mm-golf op verschillende

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

punten van de opstelling, waar het vermogen nog weer aanzienlijk geringer kan zijn, is dus een zeer gevoelige meetmethode nodig.

Volgens een veel gebruikt principe wordt om deze reden de golf in amplitude gemoduleerd en gebruikt men achter de detector een selectieve indicator. Deze bestaat uit een versterker die op de modulatiefrequentie (b.v. 800 Hz) is afgestemd, een laagfrequentiedetector en een gelijkspanningsmeter. Bij een modulatiediepte van 100% kan men dan volle uitslag krijgen bij een microgolfvermogen van de orde van 1 μW. De gevoeligheid kan nog worden opgevoerd door toepassing van synchrone detectie; om het ruisniveau laag te houden, kiest men dan bij voorkeur een vrij hoge modulatiefrequentie (b.v. 8000 Hz).

Wij willen hier in het kort enige modulatiemethodes bespreken. De meest toegepaste methode bestaat in het periodiek variëren van de reflectorspanning V_r van het reflexieklystron tussen de waarde waarbij de buis optimaal oscilleert, en een waarde waarbij hij niet oscilleert. Een bezwaar van deze methode is dat de oscillatiefrequentie afhangt van V_r [10]; om ongewenste frequentiemodulatie te voorkomen, zou men V_r dus kanteelvormig moeten variëren, maar in de praktijk is het zeer moeilijk de flanken voldoende steil te maken en V_r in het oscillatie-interval voldoende constant te houden. Er blijft dus enige frequentiemodulatie bestaan, hetgeen o.a. bij brugschakelingen ongewenst is.

In ons geval, waarin een frequentievermenigvuldiger wordt gebruikt, kan het moduleren, zonder dat er frequentiemodulatie ontstaat, eenvoudig gebeuren door over de diode van de frequentievermenigvuldiger, in serie met een eventuele voorspanning, een laagfrequente wisselspanning te zetten. Een wisselspanning van ca. 1 V is al voldoende om de 2-mm-golf 100% in amplitude te moduleren.

Werkt men zonder frequentievermenigvuldiger, dan kan men zuivere amplitudemodulatie verkrijgen, b.v. door gebruik te maken van een nieuw onderdeel, de zg. *PIN*-modulator [11]. Dit is een elektrisch bestuurde verzwakker, die in de golfpijp is opgenomen. Hij bestaat uit een schijfje germanium waarin een *P*-gebied en een *N*-gebied zijn gescheiden door een *I*-gebied van zuiver germanium met een uiterst gering, „intrinsiek", geleidingsvermogen. Alleen het *I*-gebied bevindt zich binnen de golfpijp. In de normale toestand gedraagt het zich als een dielektricum met geringe verliezen. Legt men echter tussen het *P*- en het *N*-gebied een spanning in de doorlaatrichting aan, dan worden gaten en elektronen geïnjecteerd in het *I*-gebied, dat daardoor een absorberend medium wordt. Op deze wijze kunnen door middel van een stuurstroom van 15 mA (stuurvermogen ca. 10 mW) de verliezen in het *I*-gebied zo groot worden gemaakt dat de verzwakking 25 dB toeneemt. Is de stuurstroom een wisselstroom, dan wordt de doorgaande golf dus in amplitude gemoduleerd. In *fig. 6* is een *PIN*-modulator voor 2 mm afgebeeld.

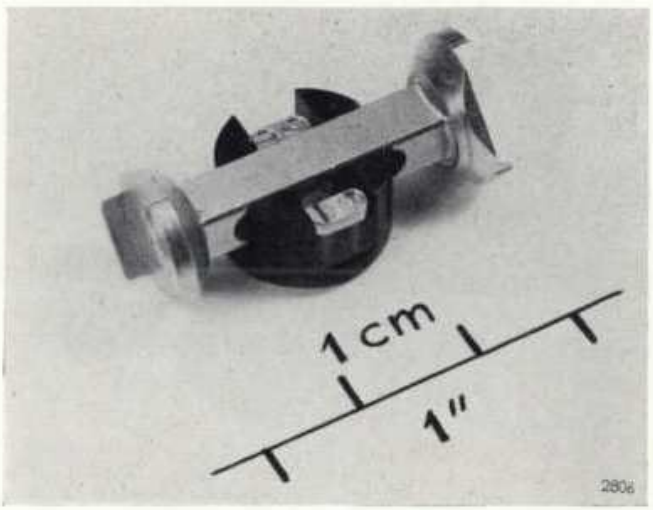


Fig. 6. *PIN*-modulator voor 2 mm golflengte. De verzwakking is regelbaar van ca. 5 dB tot ca. 30 dB. De modulatiefrequentie waarbij de modulatiediepte 3 dB is afgenomen, bedraagt ca. 50 kHz.

Golfpijp en klauwflens

Op enkele uitzonderingen na hebben de golfpijpen in de verschillende onderdelen een rechthoekige doorsnede (alleen in de rotatieverzwakker, de variabele impedantie en de rotatierichtkoppeling is, omdat in deze straks te bespreken onderdelen een deel van de golfpijp om zijn lengteas draaibaar moet zijn, een ronde doorsnede gekozen).

De rechthoekige golfpijpen zijn opgebouwd uit een gedeelte waarin een groef is gefreesd, en een daarop vastgeschroefde of gesoldeerde vlakke dekplaat. Het materiaal is in de meeste gevallen messing; de golfpijpen zijn dan inwendig en uitwendig verguld, waardoor het oppervlak constante eigenschappen verkrijgt. Alleen daar waar de verzwakking minimaal moet zijn, is zilver gebruikt.

Inwendig hebben de golfpijpen voor 2 mm de afmetingen 0,83 bij 1,66 mm, met een tolerantie van 0,01 mm; de uitwendige afmetingen worden uitsluitend bepaald door de mechanische overwegingen die men bij het desbetreffende onderdeel wil laten

[10]) Zie het in [5]) aangehaalde artikel van Van Iperen, blz. 228 (fig. 6 en noot [4])).

[11]) F. C. de Ronde, H. J. G. Meyer en O. W. Memelink, The *PIN*-modulator, an electrically controlled attenuator for mm and sub-mm waves, Trans. Inst. Rad. Engrs. on microwave theory and techniques **8**, 325-327, 1960 (no. 3). Zie ook Nederlandse octrooiaanvrage no. 229 531 van 11 juli 1958.

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

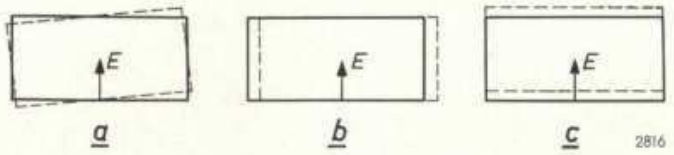


Fig. 7. Te grote tolerantie van de flenzen onderling of van de flens ten opzichte van de golfpijp kan tot gevolg hebben dat de wanden niet in elkaars verlengde komen te liggen, b.v. doordat de golfpijpen ten opzichte van elkaar zijn gedraaid (geval *a*), of verschoven loodrecht op het elektrische veld *E* (geval *b*), of verschoven in de richting van *E* (geval *c*).

gelden. De dwarsdoorsnede moet uniform zijn, anders treedt er bij aaneengekoppelde onderdelen een discontinuïteit in de doorsnede op, die reflexie veroorzaakt. Maar ook bij uniforme doorsneden zijn reflexies niet uitgesloten, namelijk als de wanden van de aaneengekoppelde stukken golfpijp niet precies in elkaars verlengde vallen (*fig. 7a, b* en *c*) [12]). De fout ontstaat hier doordat de golfpijpkoppeling (de flenzen en de middelen waarmee deze aan elkaar worden bevestigd) de pijpen niet goed op elkaar doet aansluiten. Een principiële eis die men aan een golfpijpkoppeling moet stellen, is dat de wanden zuiver in elkaars verlengde komen te liggen.

Wenselijke eigenschappen van een golfpijpkoppeling zijn verder:

1) De lengte in axiale richting moet klein zijn, om de verzwakking en de afhankelijkheid van de frequentie [13]) gering te houden. Dit geldt zowel voor de flens zelf als voor de ruimte tussen flens en onderdeel. De constructie moet dus zodanig zijn dat men niet met gereedschap tussen flens en onderdeel behoeft te komen; bevestiging in een richting loodrecht op de as verdient daarom de voorkeur.
2) De verliezen moeten gering en reproduceerbaar zijn. Dit laatste wil zeggen dat de verliezen onafhankelijk moeten zijn van de kracht waarmee de twee flenzen naar elkaar toe worden getrokken. Deze kracht moet bij voorkeur door middel van niet meer dan één schroef worden aangebracht. De constructie volgens *fig. 8*, waarbij de flenzen met b.v. vier schroeven aan elkaar worden bevestigd, is niet alleen onpraktisch, maar ook principieel onjuist, omdat men niet kan controleren of de schroeven even sterk zijn aangedraaid.

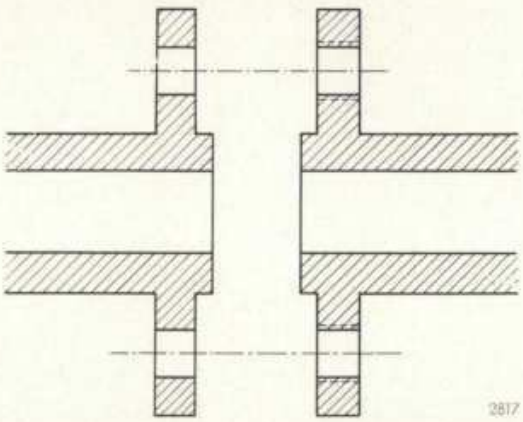


Fig. 8. Conventionele golfpijpkoppeling. De flenzen worden met b.v. vier schroefbouten naar elkaar toe getrokken. Bezwaren:
1) Men kan niet nagaan of de bouten even sterk zijn aangedraaid.
2) Er is tussen flens en onderdeel ruimte nodig, zodat de golfpijpen betrekkelijk lang moeten zijn.

3) De koppeling moet universeel zijn, d.w.z. de linker- en de rechterzijde van de onderdelen moeten verwisselbaar zijn, en ook de onder- en de bovenzijde.

Een flens die aan al deze voorwaarden voldoet, is de klauwflens, waarvan al onze 2-mm-onderdelen zijn voorzien. *Fig. 9* toont twee klauwflenzen en de uit twee scharnierende helften bestaande klemring, waarmee door middel van één schroef loodrecht op de asrichting de twee klauwflenzen naar elkaar toe worden gedrukt. De koppeling — de twee flenzen incl. de klemring — is axiaal niet langer dan

[12]) U. von Kienlin en A. Kürzl, Reflexionen an Hohlleiter-Flanschverbindungen, Nachr.techn. Z. **11**, 561-564, 1958.
[13]) Het frequentiegebied waarbinnen een rechthoekige golfpijp met de TE_{01}-trillingswijze bruikbaar is, loopt van ca. 1,2 tot ca. 1,9 maal de afsnijfrequentie $f_c = c/2a$ (c = lichtsnelheid, a = breedte van de golfpijp).

Fig. 9. Links en rechts een stukje golfpijp met klauwflens, in het midden boven de scharnierende klemring waarmee de flenzen aan elkaar worden verbonden, en daaronder een rubberringetje (afbeelding op ware grootte). De klemring wordt met één schroef, loodrecht op de as van de golfpijpen, dichtgetrokken. Het tussengelegde ringetje geeft een luchtdichte afsluiting; de lucht in het hele golfpijpsysteem kan dan onder druk worden gezet, om binnendringen van vocht te beletten.

De modulus van de reflexiecoëfficiënt van de klauwflenskoppeling is kleiner dan 0,005.

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

twee maal de flensdikte, nl. 5 mm. Zoals uit de verschillende foto's in dit artikel blijkt, zijn de flenzen vrijwel onmiddellijk tegen het onderdeel aangebracht. Dit leidt tot bijzonder compacte opstellingen.

Gedetailleerde beschrijving van enige belangrijke instrumenten

De voornaamste onderdelen van de microgolfapparatuur zullen wij in het onderstaande wat uitvoeriger bespreken. Het betreft drie instelbare, van schalen voorziene, onderdelen: de rotatieverzwakker, de variabele impedantie en de rotatierichtkoppeling.

De rotatieverzwakker

Bij metingen met microgolven is het dikwijls nodig het vermogen van de doorgelaten golf op een bepaald niveau in te stellen. Ook bestaat er vaak behoefte aan een instrument waarmee men een bekende verzwakking kan introduceren. Voor beide doeleinden worden verzwakkers gebruikt. Een van de oudste is de zg. vaanverzwakker. Het principe hiervan is verduidelijkt in *fig. 10*: een lamel („vaan")

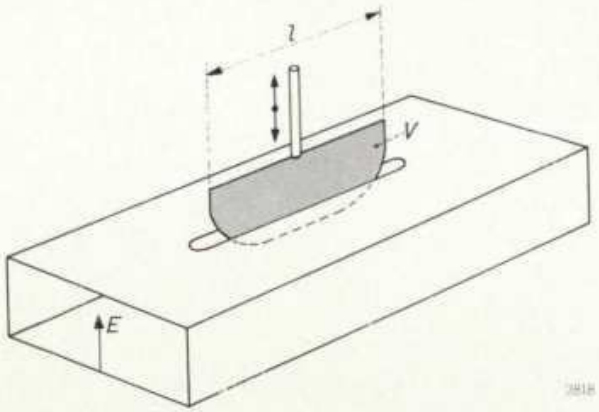


Fig. 10. Principe van de vaanverzwakker. Een absorberende vaan V kan, evenwijdig met het elektrische veld E, door een spleet dieper of minder diep in de golfpijp worden gestoken. De verzwakking neemt toe met de diepte, maar hangt ook af van de verhouding van de lengte l van de vaan tot de golflengte, dus van de frequentie.

V met absorberend weerstandslaagje kan, evenwijdig met de voortplantingsrichting en met het elektrische veld E, dieper of minder diep in de golfpijp worden gebracht. De absorptie die de vaan veroorzaakt, is groter naarmate de vaan dieper in de golfpijp reikt en naarmate zijn axiale lengte l groter is ten opzichte van de golflengte. In dit laatste schuilt een nadeel, daar de verzwakking dus mede afhangt van de frequentie. Is l niet groot ten opzichte van de golflengte, dan is de verzwakking bovendien afhankelijk van de staandegolfverhouding in de pijp.

Deze nadelen zijn geheel afwezig bij de rotatieverzwakker, in Amerika tijdens de oorlog uitgevonden door Bowen [14]). Deze verzwakker heeft bovendien het voordeel dat het een absoluut instrument is, d.w.z. dat de schaal, waarop de verzwakking in dB afleesbaar is, een bekende mathematische wet volgt en dus tevoren reeds, zonder ijking, op het instrument kan worden aangebracht.

Een schematische doorsnede van de rotatieverzwakker is gegeven in *fig. 11a*. De openingen *1* en *2* zijn rechthoekig, het middengedeelte *5-7-6* is rond. De stukken *3* en *4* vormen overgangen tussen de rechthoekige en de ronde doorsnede. Van het ronde gedeelte is het middenstuk, *7*, draaibaar om de lengteas. In elk van de vaste stukken, *5* en *6*, bevindt zich een absorptievaan (*8*, *9*), loodrecht op het elektrische veld, dus evenwijdig met de lange zijden van de rechthoekige golfpijpen (fig. 11*b*). Ook het draaibare gedeelte bevat een absorptievaan, *10*. Deze kan gedraaid worden van evenwijdig met *8* en *9* tot loodrecht erop; de uiterste standen corresponderen met de minimale resp. de maximale verzwakking, zoals hieronder zal blijken.

De verzwakking als functie van de hoek α tussen het vlak van de vaan *10* en het vlak van de vanen *8* en *9* vindt men als volgt. Het elektrische veld E van een bij *1* binnenkomende golf staat in het vaste gedeelte *5* loodrecht op de vaan *8*; de golf wordt hier dus onverzwakt doorgelaten. In het draaibare gedeelte *7* ontbinden we E in een component $E \sin \alpha$ in het vlak van de vaan *10* en een component $E \cos \alpha$ loodrecht erop (fig. 11*c*). De component $E \sin \alpha$ wordt in de vaan geheel geabsorbeerd, zodat alleen de component $E \cos \alpha$ overblijft. In het vaste gedeelte *6* ten slotte is het veld $E \cos \alpha$, waarvan de component $E \cos \alpha \sin \alpha$, in het vlak van de vaan *9*, door deze wordt geabsorbeerd en alleen de component $E \cos^2 \alpha$, loodrecht op *9*, overblijft (fig. 11*d*).

De uittredende golf heeft dus een elektrische veldsterkte die $\cos^2 \alpha$ maal die van de invallende golf is. De verzwakking is derhalve uitsluitend een functie van de hoek α en bedraagt $-20 \log \cos^2 \alpha$ dB. Men kan dus direct, zonder ijking, een schaal aanbrengen waarop de verzwakking afleesbaar is.

Het is zaak dat de vanen *8*, *9* en *10* zo weinig mogelijk reflecteren. Met het oog daarop zijn ze trapeziumvormig afgeschuind en moeten ze bovendien zo dun mogelijk zijn. Om deze reden bestaan ze uit een laagje metaal, dat op een blaadje mica is aangebracht. De dikte van het laagje metaal is klein

---

[14]) G. C. Southworth, Principles and applications of waveguide transmission, Van Nostrand, New York 1950, blz.374. B. P. Hand, A precision waveguide attenuator which obeys a mathematical law, Hewlett-Packard Journ. **6**, jan. 1955.

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

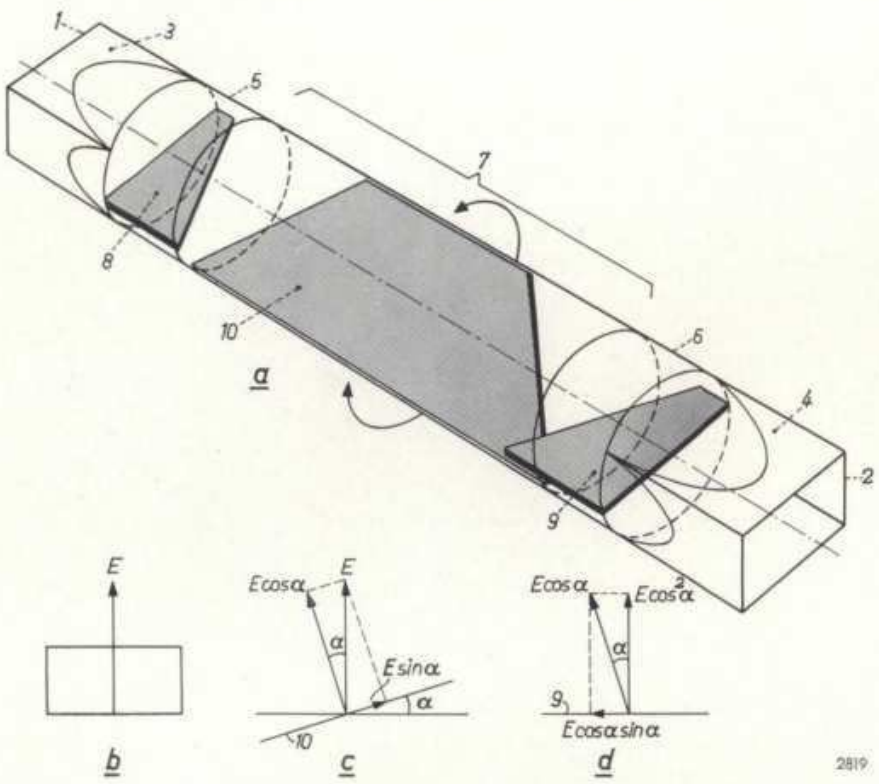


Fig. 11. *a*) Schematische doorsnede van de rotatieverzwakker. *1*, *2* openingen ter aansluiting op rechthoekige golfpijpen. *3*, *4* overgangsstukken rechthoekig-rond resp. rond-rechthoekig. *5*, *6* vaststaande gedeelten van een ronde golfpijp. *7* draaibaar gedeelte. *8*, *9* en *10* absorberende vanen.
b) De rechthoekige opening bij *1* en *2* (lange zijden evenwijdig met de vanen *8* en *9*). *E* elektrisch veld.
c) Van een bij *1* invallende golf wordt in vaan *10* de component $E \sin \alpha$ van het elektrische veld geabsorbeerd en blijft alleen de component $E \cos \alpha$ over (α is de hoek die het vlak van vaan *10* met het vlak van de vaste vanen *8* en *9* maakt).
d) In deel *6* wordt van de overgebleven golf de component $E \cos \alpha \sin \alpha$ door vaan *9* geabsorbeerd en blijft alleen de component $E \cos^2 \alpha$ over. De totale verzwakking is dus $\cos^2 \alpha$, of $-20 \log \cos^2 \alpha$ dB.

ten opzichte van de indringingsdiepte, zodat het laagje zich gedraagt als een weerstandslaag en de golf sterk absorbeert. Dank zij de afschuining en de geringe dikte van de vanen bedraagt de reflexiecoëfficiënt van de verzwakker minder dan 0,02.

Fig. 12 is een foto van de rotatieverzwakker voor 2 mm golflengte.

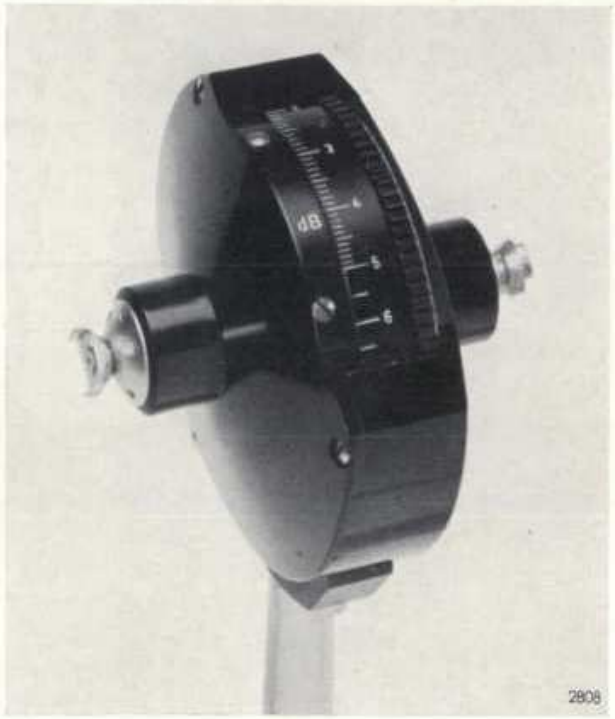


Fig. 12. Rotatieverzwakker voor 2 mm golflengte. De verzwakking is onafhankelijk van de frequentie en af te lezen op een schaal die van 0 dB tot 50 dB loopt. Het tussenschakelverlies is 3,5 dB, de staandegolfverhouding kleiner dan 1,05.

De variabele impedantie

Aan het eind van een golfpijp treedt in het algemeen reflexie op [6]). De invallende en de gereflecteerde golf geven aanleiding tot een staande golf, waardoor op bepaalde plaatsen in de golfpijp de elektrische veldsterkte een minimum vertoont (E_{min}) en op andere plaatsen een maximum (E_{max}). De staandegolfverhouding, E_{max}/E_{min}, is een maat voor de misaanpassing (de mate waarin de afsluitende impedantie afwijkt van de karakteristieke impedantie), en in vele gevallen een belangrijk gegeven omtrent de kwaliteit van een microgolfonderdeel.

Het meten van de staandegolfverhouding in golfpijpen voor het centimetergebied gebeurt op analoge wijze als bij lecherleidingen, namelijk met een staandegolfdetector. Voor millimetergolven echter is een staandegolfdetector met de vereiste nauwkeurigheid moeilijk te verwezenlijken. In plaats van de staandegolfverhouding kan men de reflexiecoëfficiënt meten; tussen deze grootheid en de staandegolfverhouding bestaat namelijk een eenvoudige betrekking (zie b.v. het eerste in [6]) aangehaalde artikel, blz. 18). Dank zij het bestaan van een variabele impedantie waarop de reflexiecoëfficiënt direct afleesbaar is, kan deze meting gemakkelijk worden uitgevoerd met een soort brugschakeling. De brug wordt in evenwicht gebracht door de reflexiecoëfficiënt van de variabele impedantie gelijk te maken aan die van de onbekende impedantie.

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

Als brugelement fungeert hier een zg. hybridische T, die in *fig. 13a* schematisch is voorgesteld. Een golf die de arm *1* binnenkomt, verdeelt zich op het vertakkingspunt in twee even sterke golven, die de symmetrische armen *2* en *3* binnengaan. Er vindt geen rechtstreekse overgang van energie van arm *1* naar arm *4* plaats. Aan het eind van arm *2* bevindt zich de onbekende impedantie Z_2, en aan het eind van arm *3* de variabele impedantie Z_3. De aan Z_2 en Z_3 gereflecteerde golven lopen naar het vertakkingspunt terug en treden de arm *4* binnen. Voor het geval dat men de modulus en het argument van Z_3 gelijk gemaakt heeft aan die van Z_2, geeft fig. 13*b* schematisch weer hoe de elektrische veldsterkte van de aan Z_2 teruggekaatste golf in de armen *2* en *4* verloopt, en fig. 13*c* hetzelfde voor de aan Z_3 gereflecteerde golven in de armen *3* en *4*. In de arm *4* zijn de veldsterkten gelijk en tegengesteld, de golven heffen elkaar dus op. Een indicator, aangesloten op een in de arm *4* geplaatste detector, zal bij evenwicht derhalve geen uitslag vertonen, doch wel uitslaan zolang Z_3 nog ongelijk aan Z_2 is.

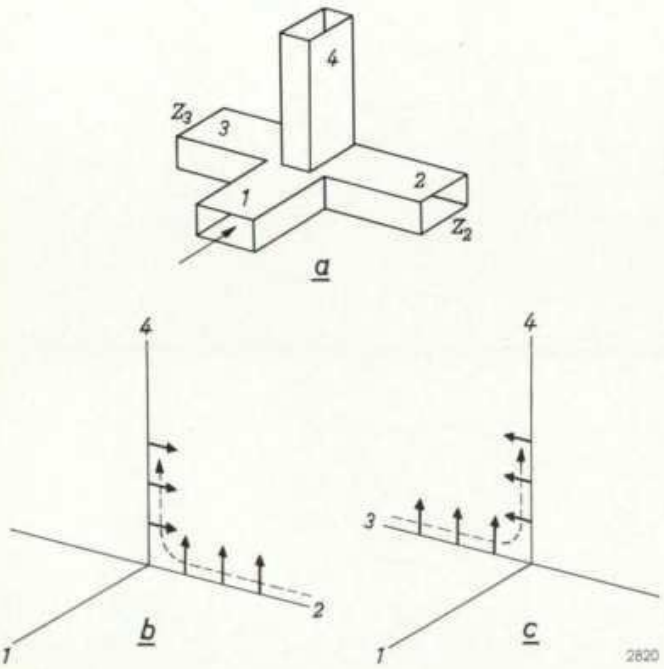


Fig. 13. *a*) Schematische voorstelling van een hybridische T. Komt een golf de arm *1* binnen, dan gaan onderling even sterke golven de armen *2* en *3* in. Deze golven worden aan de impedanties Z_2 en Z_3 aan het eind van deze armen gereflecteerd en gaan vervolgens deels terug de arm *1* in (wat hier verder buiten beschouwing kan blijven), deels ook de arm *4* in. Daar heffen de golven elkaar op indien Z_3 naar modulus en argument gelijk is aan Z_2.
b) De getrokken pijltjes stellen het elektrische veld van de golf voor die aan Z_2 is gereflecteerd en de arm *4* ingaat; de gestippelde pijl geeft de voorplantingsrichting aan.
c) Idem voor de golf die aan Z_3 is gereflecteerd. Als $Z_3 = Z_2$, heffen in de arm *4* de beide golven elkaar dus op.

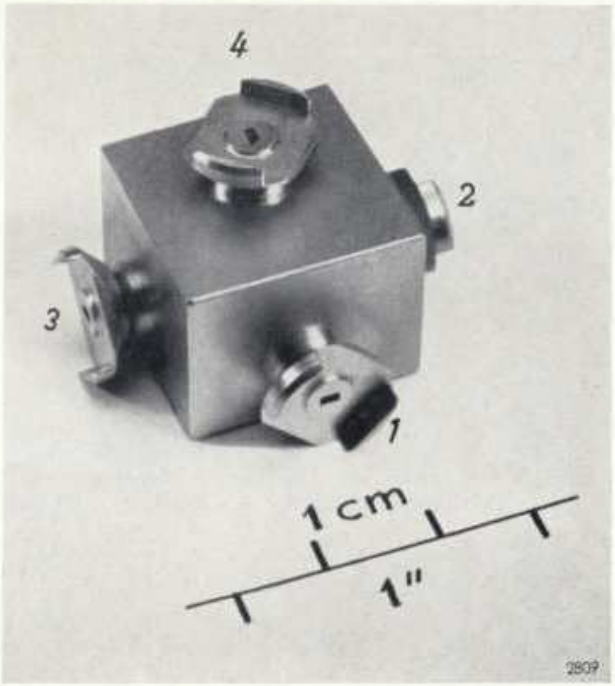


Fig. 14. Hybridische T voor 2 mm golflente. Nummering van de armen als in fig. 13. De ontkoppeling tussen de armen *1* en *4* is groter dan 30 dB.

Fig. 14 toont een hybridische T voor 2 mm golflengte. Waarop het bij dit onderdeel bijzonder aankomt, is dat de symmetrievlakken van de T *1-2-3* en de T *4-2-3* samenvallen.

Het principe van de variabele impedantie is verduidelijkt in *fig. 15* [15]). Ter plaatse van de flens *1* heeft de golfpijp een rechthoekige doorsnede; deze gaat via een overgangsstuk *2* over in de ronde doorsnede van golfpijp *3*. Hierin bevinden zich twee absorberende vanen, *4* en *5*, die ook hier bestaan uit een dun laagje metaal op mica. Vaan *4* staat vast, loodrecht op het elektrische veld E van de invallende golf; vaan *5* is gemonteerd op een metalen zuiger *6*, die zowel draaibaar als verschuifbaar is. Als de vlakken van de vanen een hoek α insluiten, wordt de component $E \sin \alpha$, die evenwijdig met vaan *5* loopt, in deze vaan geabsorbeerd; de component $E \cos \alpha$, loodrecht op *5*, wordt door de zuiger *6* gereflecteerd. $E \cos \alpha$ heeft een component $E \cos \alpha \sin \alpha$ die in vaan *4* wordt geabsorbeerd, en een component $E \cos^2 \alpha$ die bij *1* als gereflecteerde golf uittreedt, zodat de modulus van de reflexiecoëfficiënt gelijk is aan $\cos^2 \alpha$. Men varieert dus deze modulus door met behulp van de zuigerstang de vaan *5* te draaien. De zuiger in- of uitschuivend, verplaatst men het reflecterende oppervlak, en daarmee verandert men het argument van de reflexiecoëfficiënt. Een ver-

[15]) Zie ook F. C. de Ronde, A simple component for impedance measurements at cm and mm waves: the direct-reading variable impedance, Communic. Congrès internat. Circuits et antennes hyperfréquences, Parijs 1957, deel 1 (suppl. Onde électr. **38**, no. 376 bis, blz. 294-295, 1958).

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

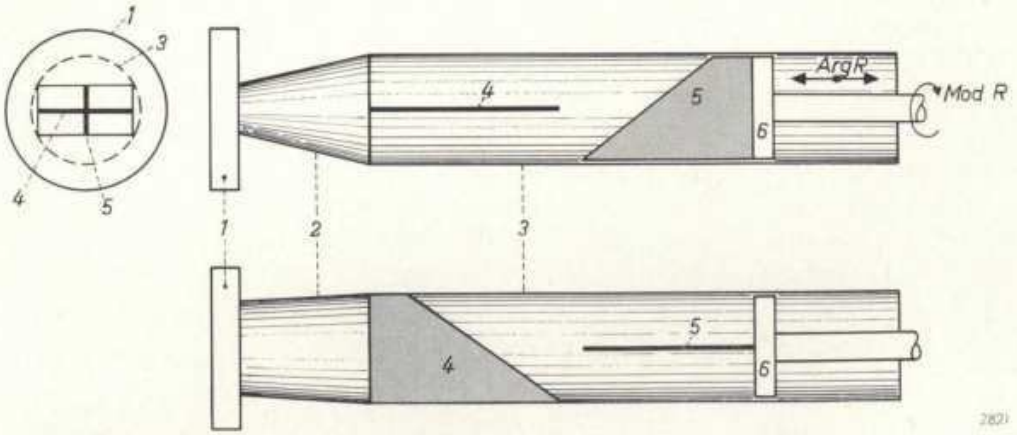


Fig. 15. Axiale doorsneden van de variabele impedantie volgens twee onderling loodrechte vlakken, en aanzicht van links. *1* flens met rechthoekige opening. *2* overgang rechthoekig-rond. *3* ronde golfpijp. *4* vaste absorberende vaan. *5* draai- en verschuifbare absorberende vaan, bevestigd aan de zuiger *6*. Door *5* te draaien, varieert men de modulus van de complexe reflexiecoëfficiënt; door *5* te verschuiven, varieert men het argument.

plaatsing δl wijzigt de faze φ van de gereflecteerde golf met een bedrag

$$\delta\varphi = 2 \times \frac{\delta l}{\lambda_{gr}} \times 2\pi \text{ radialen},$$

waarin λ_{gr} de golflengte in de ronde golfpijp is; de factor 2 brengt in rekening dat de golf heen- en terugloopt.

Fig. 16. Variabele impedantie volgens fig. 15, voor 2 mm golflengte. Modulus en argument van de reflexiecoëfficiënt zijn op afzonderlijke schalen afleesbaar. Bij eliminatie van de eigen verliezen is de absolute fout in de afgelezen waarde van de modulus kleiner dan 0,05.

Zoals *fig. 16* laat zien, zijn modulus en verplaatsing direct afleesbaar. De schaal van de modulus kan, evenals die van de verzwakking bij de rotatieverzwakker, zonder ijking worden aangebracht.

De rotatierichtkoppeling

Een richtkoppeling is een instrument waarmee men in staat is aan te tonen of door een golfpijp een golf in een bepaalde richting loopt, dus b.v. of er reflexie aanwezig is. Het meest bekend is de richtkoppeling met koppelgaten tussen de hoofd- en de nevengolfpijp. De werking hiervan is geïllustreerd in *fig. 17*. Een golf door de hoofdgolfpijp W_1 naar rechts in fig. 17*a* doet de detector in de nevengolfpijp W_2 niet reageren, een golf in de tegengestelde richting (fig. 17*b*) wordt wèl gedetecteerd. Op deze wijze kan men dus een reflexie aantonen.

Een nadeel van dit soort richtkoppelingen is dat ze alleen werken in het frequentiegebied waarin de

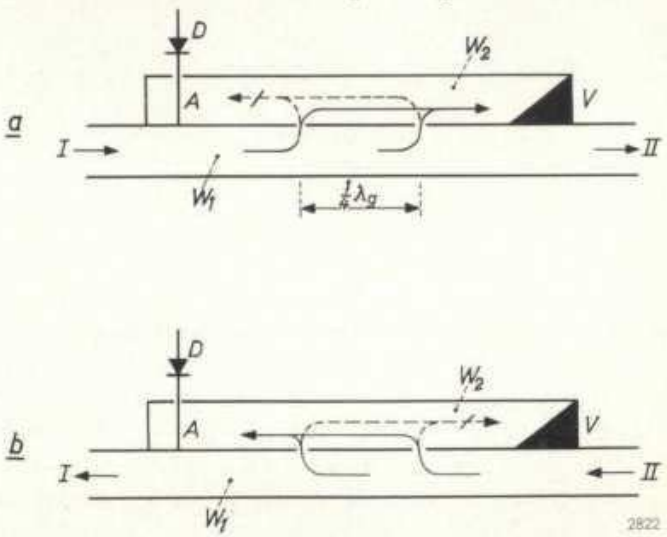


Fig. 17. Richtkoppeling met koppelgaten. In de gemeenschappelijke wand van de hoofdgolfpijp W_1 en de nevengolfpijp W_2 bevinden zich twee koppelgaten; hun onderlinge afstand is $\frac{1}{4}\lambda_g$. Met A is een antenne aangeduid, met D een detector, met V een absorberende vaan of wig.
a) Een golf in W_1 volgens de pijlrichting treedt gedeeltelijk door de koppelgaten in W_2 en verwekt daar golven die zowel naar links als naar rechts gaan. De golven in W_2 volgens de getrokken pijl zijn in faze, versterken elkaar dus, maar worden door de vaan V geabsorbeerd. De golven volgens de gestippelde pijlen verschillen $2 \times \frac{1}{4}\lambda_g$ in weglengte, zodat ze elkaar uitdoven. Er ontstaat dus geen stroom in de antenne.
b) Een golf in W_1 in de tegengestelde richting veroorzaakt in W_2 weer een golf die in dezelfde richting loopt als de golf in W_1 en die nu in de antenne stroom induceert.

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

onveranderlijke afstand tussen de koppelgaten ongeveer gelijk is aan $\frac{1}{4}\lambda_g$. Om bepaalde redenen worden gewoonlijk niet twee grote, doch een reeks kleine koppelgaten gebruikt, waarvan de onderlinge afstanden er nauwkeurig op aankomen; dit maakt de vervaardiging uiterst moeilijk. Een derde nadeel is dat de koppeling onveranderlijk is. Deze bezwaren gelden niet voor een nieuwe richtkoppeling, die wij nu zullen beschrijven.

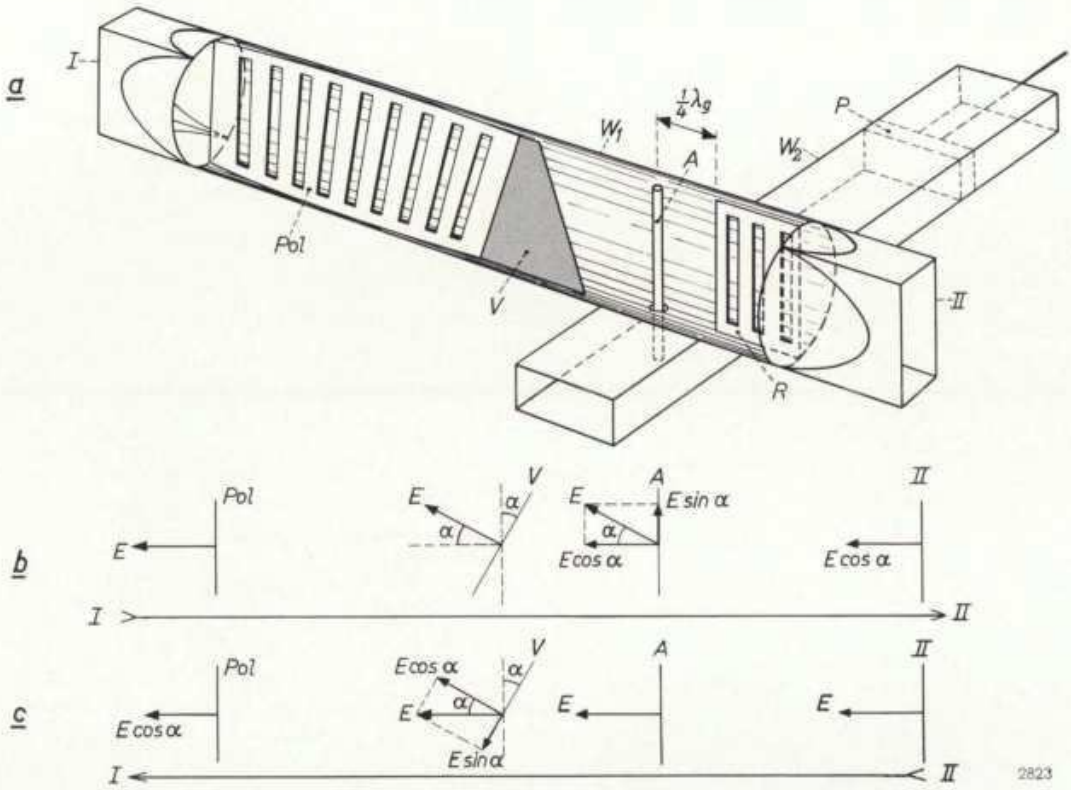


Fig. 18. *a*) Rotatierichtkoppeling (schematisch). W_1 ronde golfpijp (gedeeltelijk weggenomen, om het inwendige zichtbaar te maken), aan weerskanten overgaand in rechthoekige openingen *I* en *II*. *Pol* polarisatiestrip, door middel van een draaibaar gedeelte van de golfpijpwand tordeerbaar van 0 tot 45°. *V* absorberende vaan. *A* antenne. *R* reflector. W_2 nevengolfpijp, met rechthoekige doorsnede. *P* verplaatsbare kortsluitzuiger. Een golf die van *I* naar *II* loopt, wordt gedeeltelijk naar W_2 gekoppeld, met continu variabele en van de frequentie onafhankelijke koppeling. Van een golf die van *II* naar *I* loopt, wordt niets naar W_2 gekoppeld.
b) Elektrisch veld van een golf die van *I* naar *II* loopt, resp. aan het begin van de polarisatiestrip *Pol*, bij de absorptievaan *V*, bij de antenne *A* en in de opening *II*. De torsiehoek is α.
c) Idem voor een golf van *II* naar *I*; van rechts naar links veld bij *II*, bij *A*, bij *V* en aan het eind van *Pol*.

De rotatierichtkoppeling[16]) (*fig. 18a*) bestaat uit een ronde golfpijp W_1 (in de figuur duidelijkheidshalve grotendeels niet getekend), die aan weerszijden overgaat in een rechthoekige doorsnede. Aan de zijde *I* bevindt zich in de ronde golfpijp een als verliesvrij te beschouwen metalen strip *Pol*, de polarisatiestrip. Deze begint met zuiver evenwijdig met de brede zijden van de rechthoek te lopen, maar kan door middel van een draaibaar gedeelte van de ronde golfpijp getordeerd worden tot een schroefvlak. Waar de polarisatiestrip eindigt, gaat hij over in een afgeschuinde absorptievaan *V* van de soort zoals boven al meermalen ter sprake is gekomen. Deze vaan ligt zuiver in het vlak waarin de polarisatiestrip eindigt. Voorbij de vaan bevindt zich in de ronde golfpijp een dun staafje *A*, dat als antenne dienst doet, en $\frac{1}{4}$ golflengte verder is een metalen plaatje *R* aangebracht, dat als reflector fungeert (zie beneden). De antenne en de reflector liggen in het symmetrievlak van de ronde golfpijp dat evenwijdig met de brede zijden van de rechthoekige opening loopt. Dwarsspleten in de polarisatiestrip en in de reflector verhinderen het optreden van ongewenste trillingswijzen.

De antenne koppelt de ronde golfpijp met een

[16]) Belgische octrooiaanvrage no. 464 685 van 16 dec. 1959.

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

rechthoekige nevengolfpijp W_2. Om hierin alle energie naar één zijde te sturen — waar zich gewoonlijk een detector bevindt —, is de andere zijde van W_2 afgesloten met een instelbare kortsluitzuiger P.

De rotatierichtkoppeling werkt als volgt. We beschouwen eerst een golf die de richtkoppeling binnenkomt bij I. Het elektrische veld E staat dus loodrecht op het begin van de polarisatiestrip (fig. 18*b*). De golf loopt vervolgens langs deze strip, die over een hoek α getordeerd is. Daarbij ondergaat de polarisatierichting een draaiing α, daar de vector E loodrecht op de verliesvrije strip blijft staan. Aan het eind van de strip is het veld dus onverzwakt en staat het loodrecht op de absorptievaan, zodat deze laatste niet absorbeert. Voorbij de strip bezit het veld een verticale component $E \sin \alpha$ en een horizontale component $E \cos \alpha$. De component $E \sin \alpha$ wordt via de antenne naar de golfpijp W_2 gekoppeld, terwijl de component $E \cos \alpha$ ongehinderd doorloopt naar de rechthoekige opening II.

De reflector R zorgt ervoor dat het koppelen van de component $E \sin \alpha$ naar de golfpijp W_2 zo volledig mogelijk gebeurt. R bevindt zich daartoe $\frac{1}{4}$ golflengte achter de antenne en bestaat uit een verticaal metalen plaatje, omdat hij verticaal gepolariseerde golven naar de antenne moet terugkaatsen en horizontaal gepolariseerde moet laten passeren. Het gezamenlijke effect van de reflector R en de zuiger P is dat de component $E \sin \alpha$ nagenoeg geheel naar W_2 wordt gekoppeld.

Een golf in de tegengestelde richting, die bij II binnenkomt, met E weer loodrecht op de brede zijden van de rechthoek (fig. 18*c*, rechts), passeert ongehinderd de reflector, induceert geen stroom in de antenne (zodat golven in deze richting niet naar W_2 gekoppeld worden) en bereikt de scheef staande absorptievaan. De component $E \sin \alpha$ in het vlak van de vaan wordt geabsorbeerd, de component $E \cos \alpha$ loodrecht op de vaan bereikt de getordeerde polarisatiestrip en wordt vervolgens, loodrecht op de strip blijvend en onverzwakt, een hoek α teruggedraaid tot de stand loodrecht op de brede rechthoekzijden, in welke stand hij, via de overgang, door de rechthoekige opening I uittreedt.

Het resultaat is dus als volgt:

a) Van golven in de richting van I naar II wordt de component $E \sin \alpha$ naar W_2 gekoppeld, terwijl de component $E \cos \alpha$ doorloopt.

b) Van golven in de richting van II naar I wordt niets naar W_2 gekoppeld, terwijl de component $E \sin \alpha$ wordt geabsorbeerd en de component $E \cos \alpha$ doorloopt.

De factor die aangeeft welke fractie van het veld der golven die van I naar II lopen, naar de nevengolfpijp wordt gekoppeld, heet de koppeling. Hier is de vermogenskoppeling dus $\sin^2 \alpha$, of, in decibels, $10 \log \sin^2 \alpha$ dB. De rotatierichtkoppeling heeft derhalve een koppeling die continu variabel is en bovendien uitsluitend een functie van de hoek α, onafhankelijk van de frequentie, en op een schaal afleesbaar. Alle andere bestaande richtkoppelingen hebben een koppeling die niet veranderd kan worden en min of meer van de frequentie afhangt.

Het nut van een continu variabele koppeling moge verduidelijkt worden met een voorbeeld, waarvoor we kiezen de meting van paramagnetische resonantie aan een vaste stof [17]). (Deze meting gebeurt gewoonlijk met centimetergolven, maar dat doet niets af aan de voordelen van een variabele richtkoppeling boven een vaste.)

Fig. 19a geeft het principeschema. Via een richtkoppeling C wordt microgolfenergie van de generator G naar de te onderzoeken stof O geleid, die zich in een trilholte met regelbaar magnetostatisch veld bevindt. Van het gereflecteerde vermogen P_r wordt via dezelfde richtkoppeling een deel naar de detector D geleid. Resonantie constateert men, bij variërend magnetostatisch veld, als een scherpe daling van het gereflecteerde vermogen. De gevoeligheid is optimaal met een koppeling van −3 dB. Deze waarde komt voor bij de hybridische T (beter nog is een magische T, d.i. een reflexievrij gemaakte hybridische T).

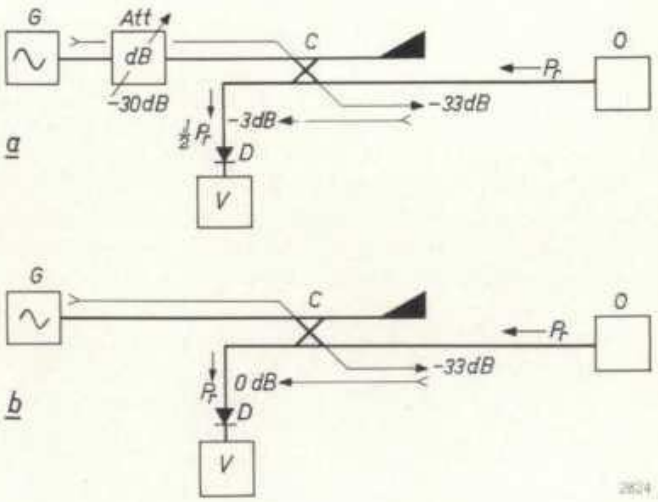


Fig. 19. *a*) Principeschema voor het meten van gyromagnetische resonantie. G microgolfgenerator. *Att* regelbare verzwakker. C vaste richtkoppeling. O object (vaste stof in trilholte met regelbaar magnetostatisch veld). D detector. V millivoltmeter.

De richtkoppeling heeft een koppeling van b.v. −3 dB in de weg van G naar O. Ter vermijding van verzadiging van O is een verzwakking van 30 dB voorgeschakeld, zodat de totale verzwakking 33 dB bedraagt. Van het gereflecteerde vermogen P_r komt via C slechts de helft in de detector.

b) Hetzelfde schema, nu met een rotatierichtkoppeling. De gewenste verzwakking van 33 dB uit het voorbeeld (*a*) kan nu zonder variabele verzwakker worden verkregen door de koppeling van G naar O op −33 dB in te stellen. De koppeling van O naar D is dan sterk, zodat nagenoeg het gehele gereflecteerde vermogen P_r in de detector komt.

[17]) Zie b.v. J. S. van Wieringen, Paramagnetische resonantie, Philips techn. T. **19**, 325-337, 1957.

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

De magische T wordt dan ook, mede om zijn goede gerichtheid (dit begrip wordt aanstonds verklaard), bij dit soort metingen vaak als richtkoppeling gebruikt.

Bij de koppeling van —3 dB kan zich in het object O verzadiging voordoen, d.w.z. het invallende vermogen is zo groot dat het gereflecteerde vermogen er vrijwel onafhankelijk van is. Om beneden dit verzadigingsgebied te blijven, moet men dus het invallende vermogen verkleinen. Het meest voor de hand ligt, daartoe de vaste richtkoppeling te vervangen door een met zwakkere koppeling. Dit is echter omslachtig en levert bovendien slechts een stapsgewijze regeling. Een andere methode is dat men tussen de generator en de richtkoppeling een variabele verzwakker opneemt (*Att*, fig. 19*a*). Stel dat men het vermogen, om beneden de verzadigingsgrens te blijven, 30 dB moet verzwakken; tussen generator en object heeft men dan 33 dB verzwakking (fig. 19*a*). Dit kan men eenvoudiger bereiken door in plaats van de verzwakker en de vaste 3-dB-richtkoppeling een variabele rotatierichtkoppeling te gebruiken (fig. 19*b*) en deze in te stellen op een koppeling van —33 dB. Een variabele verzwakker is dan overbodig. Bovendien heeft men het voordeel dat bij zwakke koppeling van G naar O de koppeling van O naar D juist sterk is, zodat dan nagenoeg al het gereflecteerde vermogen P_r in D terechtkomt — dit in tegenstelling met wat het geval is bij een vaste richtkoppeling van —3 dB (fig. 19*a*), waarbij de helft van P_r verloren gaat.

In fig. 19*b* moet de rotatierichtkoppeling als volgt worden aangesloten (vgl. fig. 18*a*): de generator aan het vrije einde van de nevengolfpijp W_2, het meetobject aan zijde I, en de detector aan zijde II.

Het blijkt voldoende te zijn dat α variabel is van 0 tot 45°. Theoretisch is de koppeling dan variabel van $-\infty$ dB tot —3 dB. Mechanische onvolmaaktheden zijn er oorzaak van dat in de praktijk de zwakste koppeling tussen —30 en —40 dB ligt.

Dezelfde oorzaak maakt dat van een golf die de rotatierichtkoppeling doorloopt van II naar I, toch nog een kleine fractie naar W_2 wordt gekoppeld. Deze onvolkomen richtwerking — die men bij alle richtkoppelingen aantreft — komt tot uitdrukking in de gerichtheid. Hieronder verstaat men de verhouding van de vermogens die in de nevengolfpijp terechtkomen als gevolg van een golf van I naar II resp. van een even sterke golf van II naar I. Bij de rotatierichtkoppeling wordt de gerichtheid beter naarmate de koppeling sterker is.

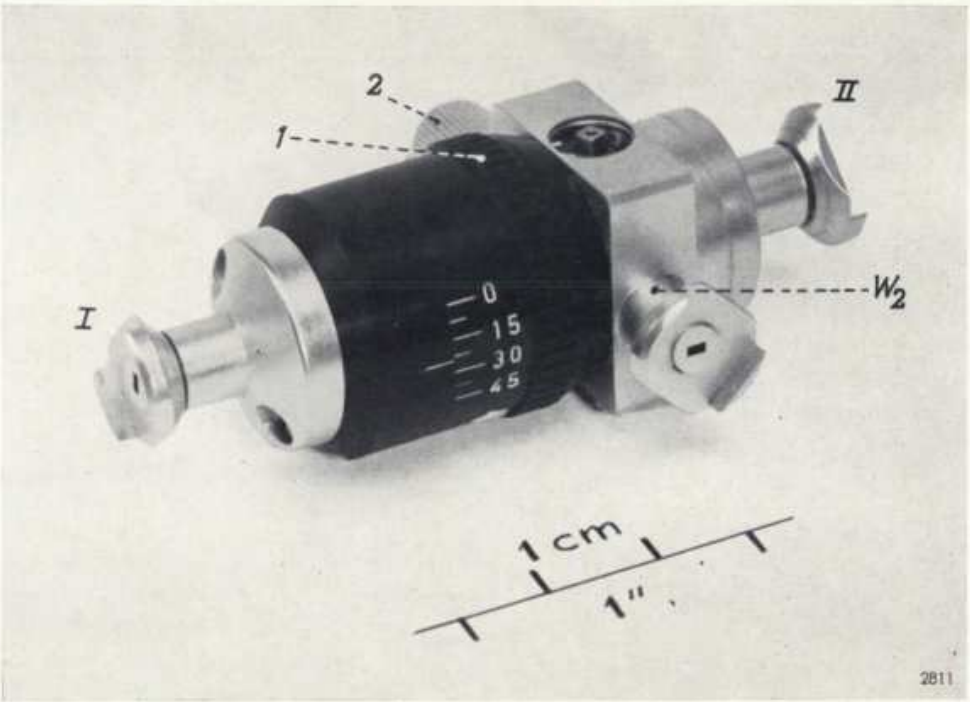


Fig. 20. Rotatierichtkoppeling voor 2 mm golflengte. I, II en W_2 als in fig. 18*a*. *1* draaibare ring, waarmee de polarisatiestrip getordeerd wordt; de torsiehoek α is op een schaal afleesbaar. *2* instelknop van de kortsluitzuiger in W_2. Gerichtheid >25 dB, staandegolfverhouding <1,16.

In *fig. 20* is de rotatierichtkoppeling voor 2 mm afgebeeld.

Enige meetopstellingen waarin de boven behandelde onderdelen toepassing vinden, zullen het onderwerp vormen van deel II van dit artikel. Daarbij zal gelegenheid zijn, ook nog enkele onderdelen te beschrijven die in het voorgaande niet ter sprake zijn gekomen.

Samenvatting. Voor meetopstellingen met golven van 2 mm is een volledige reeks golfpijponderdelen ontwikkeld, waarvan in dit artikel de voornaamste de revue passeren. De 2-mm-golven worden verkregen door met behulp van een siliciumdiode de frequentie van 4-mm-golven, opgewekt door een reflexieklystron DX 151, te verdubbelen. De detector is eveneens een siliciumdiode. Aangepast wordt met behulp van kortsluitzuigers en een slingerschroefaanpasser (variant op de schuivende schroefaanpasser). Bij voorkeur wordt gewerkt met synchrone detectie of met een selectieve indicator, waarbij de 2-mm-golven in amplitude worden gemoduleerd, b.v. door op de frequentievermenigvuldiger een laagfrequente spanning van ca. 1 V te superponeren. Werkt men zonder frequentievermenigvuldiger, dan kan men de *PIN*-modulator gebruiken, d.i. een elektrisch bestuurde verzwakker, bestaande uit een schijfje germanium met een P, een I- en een N-gebied. De golfpijpen zijn in het algemeen rechthoekig van doorsnede (0,83 bij 1,66 mm) en in- en uitwendig verguld. Ze worden aan elkaar gezet met klauwflenzen, die bijzonder compacte opstellingen mogelijk maken. Drie onderdelen worden meer in detail behandeld: de rotatieverzwakker, de variabele impedantie en de rotatierichtkoppeling. Deze onderdelen zijn in hun eigenschappen geheel of voor een groot gedeelte onafhankelijk van de frequentie. De rotatierichtkoppeling levert een continu variabele en direct afleesbare koppeling van —3 tot —30 à —40 dB. De variabele impedantie wordt gebruikt in combinatie met een hybridische T en geeft een directe aflezing van modulus en argument van de reflexiecoëfficiënt.

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

BEPALING VAN KRISTALSTRUCTUREN MET RÖNTGENSTRALEN

door P. B. BRAUN en A. J. van BOMMEL.

548.735

Sinds de fundamentele onderzoekingen van Von Laue en Bragg (1912) is het röntgendiffractieonderzoek uitgegroeid tot een uiterst belangrijke methode om de vaste stof te bestuderen. Deze ontwikkeling heeft o.m. geleid tot een indrukwekkende reeks structuurbepalingen, waaronder die van vitamine B 12, strychnine en penicilline — om maar enkele te noemen die het meest tot de verbeelding zullen spreken.

Voor een inzicht in de principes waarop deze methode berust, wordt in dit artikel ingegaan op de samenhang tussen diffractiepatroon en structuur, en wordt besproken hoe men uit het één de ander kan afleiden. Dit wordt toegelicht met enkele in Eindhoven verrichte structuurbepalingen, o.a. die van een stof uit een groep magnetische materialen die onder de naam „ferroxplana" bekend zijn.

Kristallen die verschillen in structuur, vertonen ook een onderscheid in de wijze waarop ze röntgenstraling verstrooien. Hierop berust o.a. een methode voor identificatie van kristallijne stoffen. Men toont hierbij de aanwezigheid van bepaalde stoffen aan met behulp van de karakteristieke diffractiediagrammen die deze stoffen bij röntgenbestraling veroorzaken (men heeft deze diagrammen daarom wel met vingerafdrukken vergeleken) [1]).

Doch dit is nog niet alles wat men met diffractiediagrammen kan doen. Men kan ze ook gebruiken met het doel *de structuur van een stof te leren kennen.*

Het is frappant wat men in deze richting kan bereiken. Men heeft b.v. tot in details de kristal- en molecuulstructuur bepaald van penicilline. Het penicillinemolecuul is, zoals men in *fig. 1* kan zien, buitengewoon ingewikkeld van bouw: de opheldering ervan vertegenwoordigt dan ook een hoogtepunt in de ontwikkeling van de analysemethode met röntgenstralen. Andere resultaten die op dit gebied sterk de aandacht hebben getrokken, zijn de bepalingen van de structuur van strychnine en van vitamine B 12 [2]).

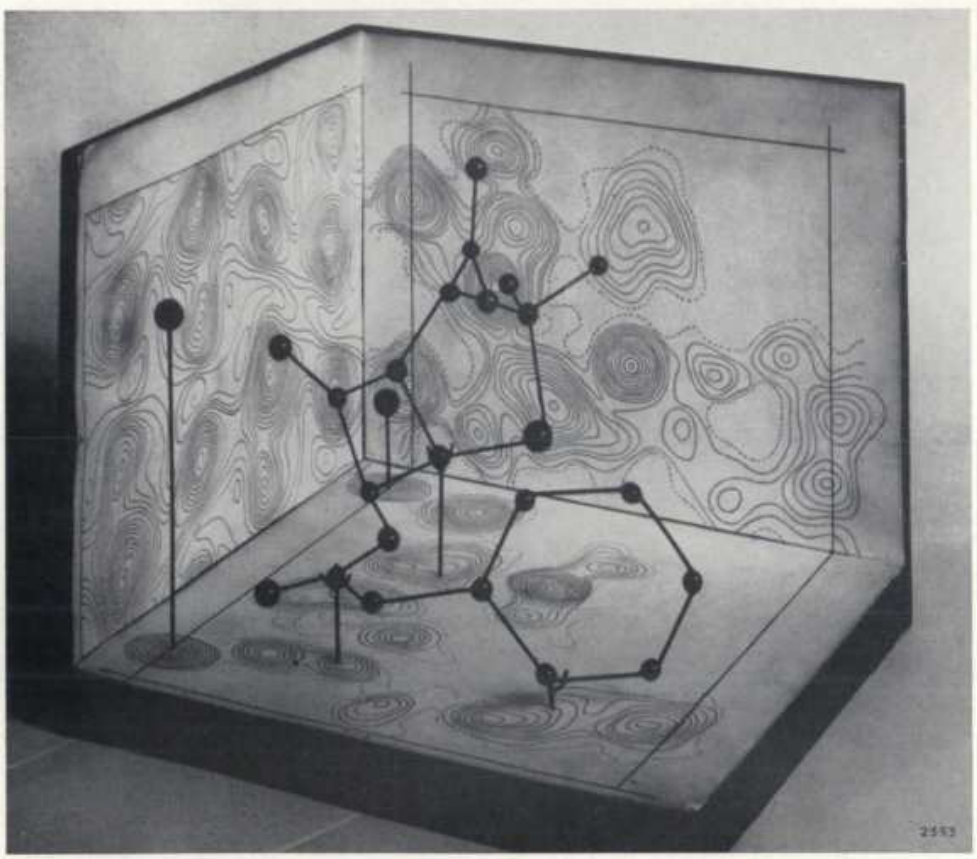


Fig. 1. Beeld van het benzylpenicillinemolecuul, verkregen met behulp van, eveneens in de figuur getekende, „fourierkaarten". Ze stellen drie projecties van het molecuul voor. De „hoogtelijnen" hierin zijn lijnen van constante elektronendichtheid, de „bergtoppen" komen overeen met geprojecteerde atomen. Deze fourierkaarten werden verkregen met behulp van röntgendiffractiemethodes. (Uit: E. Chain, Endeavour no. 28, okt. 1948, blz. 152.)

[1]) Zie b.v. W. G. Burgers, Philips techn. T. **5**, 161, 1940; W. Parrish en E. Cisney, Philips techn. T. **10**, 203, 1948.

[2]) D. Crowfoot, C. W. Bunn, B. W. Rogers-Low en A. Turner-Jones, The chemistry of penicillin, Princeton University Press, 1949. J. H. Robertson en C. A. Beevers, The crystal structure of strychnine hydrogen bromide, Acta cryst. **4**, 270-275, 1951. C. Bokhoven, J. C. Schoone en J. M. Bijvoet, The fourier synthesis of the crystal structure of strychnine sulfate pentahydrate, Acta cryst. **4**, 275-280, 1951. D. Crowfoot Hodgkin e.a., The structure of vitamin B 12, Proc. Roy. Soc. **A 242**, 228-263, 1957.

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

Met behulp van deze methode kan tevens een beter inzicht worden verkregen in allerlei fysische en chemische eigenschappen die met de structuur van vaste stoffen en moleculen samenhangen. Zo is structuuronderzoek onmisbaar bij de studie van keramische magnetische materialen (ferroxdure, ferroxplana enz.) [3].

Voor het begrijpen van de principes waarop dit structuuronderzoek is gebaseerd, moet men in de eerste plaats weten wat voor gegevens een röntgendiffractiediagram bevat, en vervolgens hoe men uit deze gegevens de structuur kan afleiden. Dit vormt het onderwerp van het eerste deel van dit artikel [4]. Het tweede deel behandelt in het kort een drietal voorbeelden, die ontleend zijn aan onderzoek dat in de laatste jaren in het Philipslaboratorium te Eindhoven is verricht.

In één adem met het röntgendiffractieonderzoek kunnen we ook het elektronen- en neutronendiffractieonderzoek noemen. Deze methodes steunen alle op dezelfde hier te behandelen grondslagen. Daartegenover staat dat ze verschillen in de wijze van uitvoering en ook enigszins in hun resultaten, waardoor ze elkaar vaak uitstekend aanvullen. Het is de bedoeling dat binnenkort in dit tijdschrift ook een artikel over neutronendiffractie zal verschijnen, waarbij de genoemde verschillen, naast andere zaken, naar voren zullen komen. De voorbeelden van structuuronderzoek betreffen in beide artikelen dezelfde stoffen, zodat een vergelijking van beide methodes goed mogelijk wordt.

Een laatste, inleidende opmerking: röntgenstralen worden uitsluitend door elektronen verstrooid. Dit betekent dat de gegevens uit röntgendiffractiediagrammen alleen op deze deeltjes betrekking kunnen hebben. Voor de bepaling van een kristalstructuur is het nodig de plaats van de atomen te vinden; dit kan echter juist gebeuren door de elektronenwolken te lokaliseren. We kunnen dus als het directe doel van röntgenanalytisch structuuronderzoek formuleren: *het bepalen van de ruimtelijke verdeling van de elektronendichtheid in een kristal.*

Een nuttige manier om de elektronendichtheid in een kristal te beschrijven

Het is kenmerkend voor een kristal dat het een driedimensionele periodiciteit heeft. Dat wil dus zeggen dat men in een kristal een ruimtelijke eenheid kan kiezen waarmee men door regelmatig stapelen het gehele kristal kan opbouwen. Men noemt de kleinste eenheid waarmee dit mogelijk is de elementaire cel.

In overeenstemming met de beschreven bouw vertoont ook de elektronendichtheid in een kristal een periodiek verloop in drie dimensies.

Nu geldt altijd dat een periodieke functie met periode d te ontbinden is in een reeks sinusgolven met periodes d, $d/2$, $d/3$ enz. Men noemt de ontbinding in deze componenten fourieranalyse, en het samenstellen van een functie uit deze componenten fouriersynthese.

Wegens de periodiciteit kan men de elektronendichtheid in een kristal eveneens ontbinden in fouriercomponenten. Deze vormen een verzameling van vlakke golven, die deels verschillende, deels dezelfde richting hebben. Voorzover ze dezelfde richting hebben, vertonen ze de genoemde verhou-

[3]) Zie b.v. J. J. Went, G. W. Rathenau, E. W. Gorter en G. W. Oosterhout, Philips techn. T. **14**, 33, 1952; G. H. Jonker, H. P. J. Wijn en P. B. Braun, Philips techn. T. **18**, 253, 1956.

[4]) Veel hiervan vindt men uitvoeriger en meer gedetailleerd in werken als: J. M. Bijvoet, N. H. Kolkmeyer en C. H. MacGillavry, Röntgenanalyse van kristallen, Centen's Uitg., Amsterdam 1948; H. Lipson en W. Cochran, The determination of crystal structures, Bell, Londen 1953; R. W. James, The crystalline state, Vol. II. The optical principles of the diffraction of X-rays, Bell, Londen 1948; J. Bouman, Theoretical principles of structural research by X-rays, Handbuch der Physik, dl. **32**, 95-237, Springer, Berlijn 1957.
Voor de techniek van het opnemen van diffractiediagrammen, zie b.v.: M. J. Buerger, X-ray crystallography, Wiley, New York 1942. H. P. Klug en L. E. Alexander, X-ray diffraction procedures, Wiley, New York 1954.

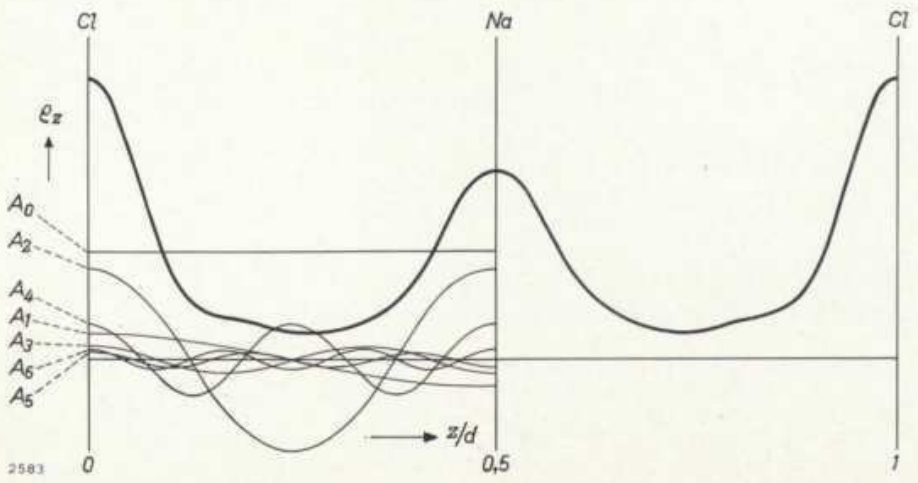


Fig. 2. De bovenste, dik getrokken kromme in de figuur kan worden verkregen door optelling van de serie golven onderaan (A_0, A_1, A_2 enz.), waarvan de golflengten zich verhouden als gehele getallen. Eerstgenoemde stelt het verloop van de elektronendichtheid (ϱ_z) tussen octaëdervlakken van keukenzout voor, de laatste zijn de fouriercomponenten van deze curve — zg. „dichtheidsgolven". z is de beschouwde richting door het kristal, d de herhalingsafstand in deze richting.

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

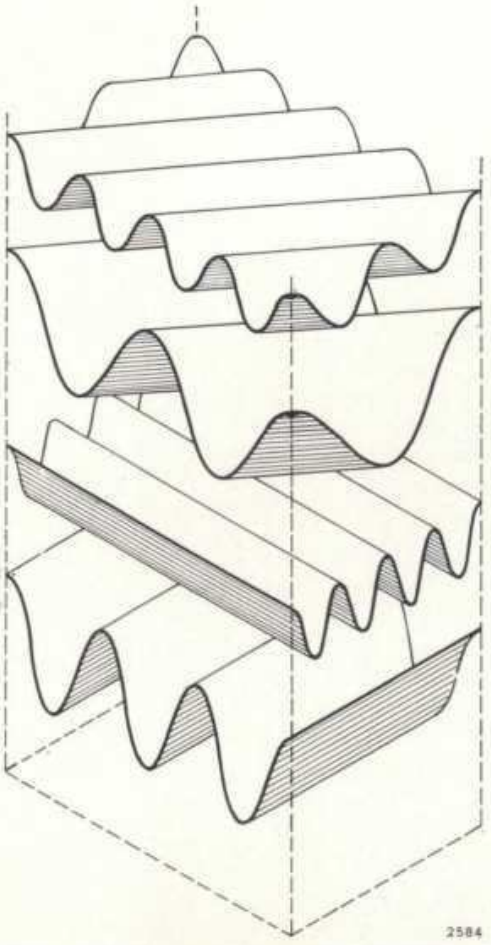


Fig. 3. „Symbolische" voorstelling van enkele dichtheidsgolven, waarbij de dichtheid is uitgezet als amplitude. We zien twee golven met dezelfde richting en met golflengten die zich verhouden als 1 : 2, en twee golven die in andere richtingen verlopen. Voor het verkrijgen van een beeld van de elektronendichtheid in een kristal moet men verschillende van zulke golven bij elkaar optellen.

dingen in golflengte. We geven deze fouriercomponenten de naam dichtheidsgolven of dichtheidscomponenten (zie de *fig. 2* en *3*).

In formule kan men dit als volgt schrijven:

$$\varrho(x, y, z) = \sum_{h} \sum_{-\infty}^{+\infty} \sum_{l} A_{hkl}\, e^{2\pi i\left(h\frac{x}{a}+k\frac{y}{b}+l\frac{z}{c}\right)}. \quad (1)$$

De term links is de elektronendichtheid als functie van de coördinaten x, y en z. De termen rechts vormen de corresponderende verzameling dichtheidsgolven. De golflengte en richting van elke golf zijn met behulp van de gehele getallen h, k en l uitgedrukt in de herhalingsafstanden a, b en c van drie golven waarvan de richtingen niet in één vlak gelegen zijn [5]). A_{hkl} is een complexe grootheid, waarvan de modulus en het argument resp. de amplitude en de faze van de desbetreffende dichtheidsgolf aangeven.

Het volume van het parallellepipedum waarvan a, b en c de ribben zijn, zal men in het algemeen zo klein mogelijk nemen; men legt zodoende de reeds genoemde elementaire cel vast.

In de praktijk kiest men soms, om de symmetrie van het kristal te doen uitkomen, een elementaire cel die een geheel aantal malen groter is dan de kleinst mogelijke. In formule (1) worden dan op systematische wijze voor bepaalde combinaties van h, k en l de corresponderende A_{hkl} gelijk aan nul („algemene uitdovingen").

We zullen nu aantonen dat de dichtheidsgolven direct zijn af te leiden uit diffractiediagrammen. We beschouwen eerst het eenvoudigste geval dat zich laat denken, nl. dat de elektronendichtheid beschreven kan worden met één enkele dichtheidsgolf (dit komt in werkelijkheid nooit voor). We laten zien wat in zo'n geval de vorm van het diffractiediagram zou zijn. Daarna doen we hetzelfde voor een elektronenverdeling die uit een aantal dichtheidsgolven bestaat, zoals bij een werkelijk kristal.

De diffractie door dichtheidsgolven

De vraag in welke richtingen één dichtheidsgolf verstrooit, laat zich het gemakkelijkst beantwoorden als men de dichtheidsgolf verdeeld denkt in plakken als in *fig. 4*. Elk van die plakken werkt als een soort spiegel. De verstrooide straling zal men dus moeten zoeken in de richting van reflexie tegen deze plakken.

In eerste instantie blijkt nu dat de gezamenlijke opbrengst aan weerkaatste straling van alle plakken in het algemeen nul is. Er komt maar onder

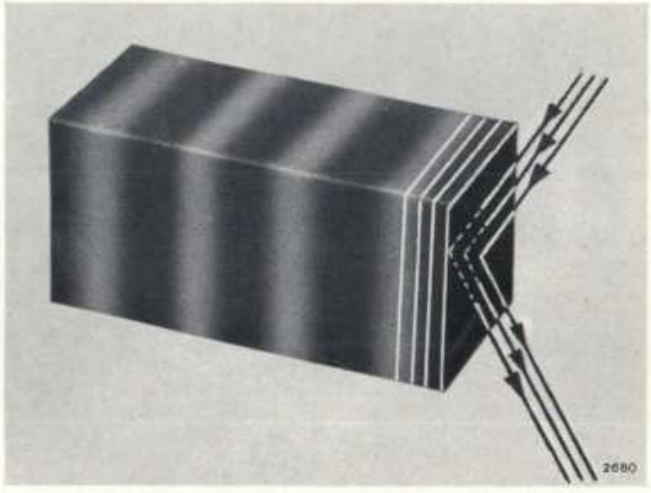


Fig. 4. Een dichtheidsgolf en een hierop vallende röntgenbundel. Het verloop van de elektronendichtheid in de dichtheidsgolf is door variatie van zwarting aangegeven. Rechts zijn drie plakken van de dichtheidsgolf getekend, die elk afzonderlijk als een spiegel voor röntgenstralen werken. Stralen die door verschillende plakken worden gespiegeld, interfereren met elkaar en doven elkaar in het algemeen uit. Alleen bij één speciale invalshoek gebeurt dit niet en ontstaat er een waarneembare reflexie.

[5]) In de aangehaalde leerboeken geeft men aan de getallen h, k en l de betekenis van indices van netvlakken. Voor een korte bespreking van de principes van structuuronderzoek, als hier beoogd, is dit nodig noch wenselijk. In overeenstemming hiermee zal in dit artikel nergens sprake zijn van netvlakken en zal men de bekende wetten van Bragg hier in een wat andere vorm aantreffen.

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

één voorwaarde een waarneembare reflexie tot stand, nl. als de hoek van inval Θ voldoet aan de relatie:

$$2d \sin \Theta = \lambda, \quad . \quad . \quad . \quad . \quad . \quad . \quad (2)$$

waarin λ de golflengte van de straling en d die van de dichtheidsgolf voorstelt. De amplitude van de gereflecteerde stralen heeft in dat geval een waarde die evenredig is met de amplitude van de dichtheidsgolf.

Deze twee relaties, wat betreft hoek en amplitude, vormen de grondslag van het structuuronderzoek met röntgenstralen. Er blijkt uit dat een reflexie niet minder dan drie gegevens over een dichtheidsgolf binnen ons bereik kan brengen — nl. de amplitude, de golflengte en de richting. De intensiteit van de reflexie is een maat voor de amplitude van de dichtheidsgolf. Bij bekende golflengte van de röntgenstraling berekenen we uit de afbuigingshoek de golflengte van de dichtheidsgolf. En ten slotte bepaalt de stand van het kristal te zamen met richting en afbuigingshoek van de reflexie de richting van de dichtheidsgolf.

Een bewijs van de twee bovengenoemde beweringen is gemakkelijk te leveren. We zullen daarbij vectornotatie gebruiken en uitgaan van *fig. 5*.

Het weglengteverschil van de in fig. 5 getekende stralen is gelijk aan de projectie van de vector $\mathbf{r}$ op $\mathbf{S}$ minus de projectie van $\mathbf{r}$ op $\mathbf{S}_0$, of wel:

$$\mathbf{r} \cdot (\mathbf{S} - \mathbf{S}_0).$$

Het hiermee corresponderende fazeverschil is:

$$\frac{2\pi\, \mathbf{r} \cdot (\mathbf{S} - \mathbf{S}_0)}{\lambda}.$$

De totale amplitude F van de straling, door het verstrooiend volume veroorzaakt, wordt verkregen door optellen van de bijdragen van alle volume-elementen $\mathrm{d}V$, ieder met een elektronendichtheid $\varrho(\mathbf{r})$, rekening houdend met de onderlinge fazeverschillen:

$$F = \int_V \varrho(\mathbf{r})\, \mathrm{e}^{-2\pi i \frac{\mathbf{r} \cdot (\mathbf{S} - \mathbf{S}_0)}{\lambda}} \mathrm{d}V. \quad . \quad . \quad . \quad . \quad (3)$$

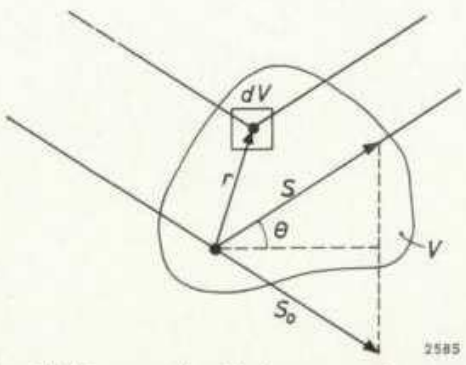


Fig. 5. Ter afleiding van de reflexievoorwaarde van een dichtheidsgolf. $\mathbf{S}$ en $\mathbf{S}_0$ zijn eenheidsvectoren, die resp. de invals- en de verstrooiingsrichting van een röntgenbundel aangeven, waarvan twee stralen zijn getekend. $\mathbf{r}$ is de vectoriële afstand tussen twee verstrooiende punten, $\mathrm{d}V$ een volume-element van het totale volume V, en Θ is de halve afbuigingshoek.

Indien we als verstrooiend lichaam een dichtheidsgolf nemen, dan kunnen we voor $\varrho(\mathbf{r})$ schrijven:

$$\varrho(\mathbf{r}) = A\, \mathrm{e}^{2\pi i \frac{\mathbf{r} \cdot \mathbf{z}}{d}}, \quad . \quad . \quad . \quad . \quad . \quad . \quad . \quad (4)$$

waarbij $\mathbf{z}$ de eenheidsvector is die de richting van de dichtheidsgolf aangeeft, en A en d resp. de amplitude en de golflengte voorstellen. Vullen we formule (4) in formule (3) in, dan krijgen we:

$$F = \int_V A\, \mathrm{e}^{2\pi i\, \mathbf{r} \left(\frac{\mathbf{z}}{d} - \frac{\mathbf{S} - \mathbf{S}_0}{\lambda} \right)} \mathrm{d}V. \quad . \quad . \quad . \quad . \quad (5)$$

Deze integraal zal alleen dan een van nul verschillende waarde hebben als de exponent nul is.

Dit levert ons als voorwaarde van reflexie:

$$\frac{\mathbf{z}}{d} = \frac{\mathbf{S} - \mathbf{S}_0}{\lambda}.$$

Dit betekent:

a) De beide vectoren $(\mathbf{S} - \mathbf{S}_0)$ en $\mathbf{z}$ moeten dezelfde richting hebben, d.w.z. invals- en afbuigingsrichting liggen met $\mathbf{z}$ in één vlak en maken dezelfde hoek met $\mathbf{z}$. Met andere woorden: de plakken waarin we in het voorgaande de dichtheidsgolf hebben verdeeld, werken als spiegels.

b) De absolute waarden van de vectoren moeten gelijk zijn. Aangezien $|\mathbf{S} - \mathbf{S}_0| = 2 \sin \Theta$ (zie fig. 5), is $1/d = 2 \sin \Theta / \lambda$, of $2d \sin \Theta = \lambda$. Als aan deze voorwaarden voldaan is, levert de integraal op:

$$F = VA. \quad . \quad . \quad . \quad . \quad . \quad . \quad . \quad . \quad . \quad (6)$$

Dus de amplitude van de afgebogen straal is evenredig met de amplitude van de beschouwde dichtheidsgolf [6]).

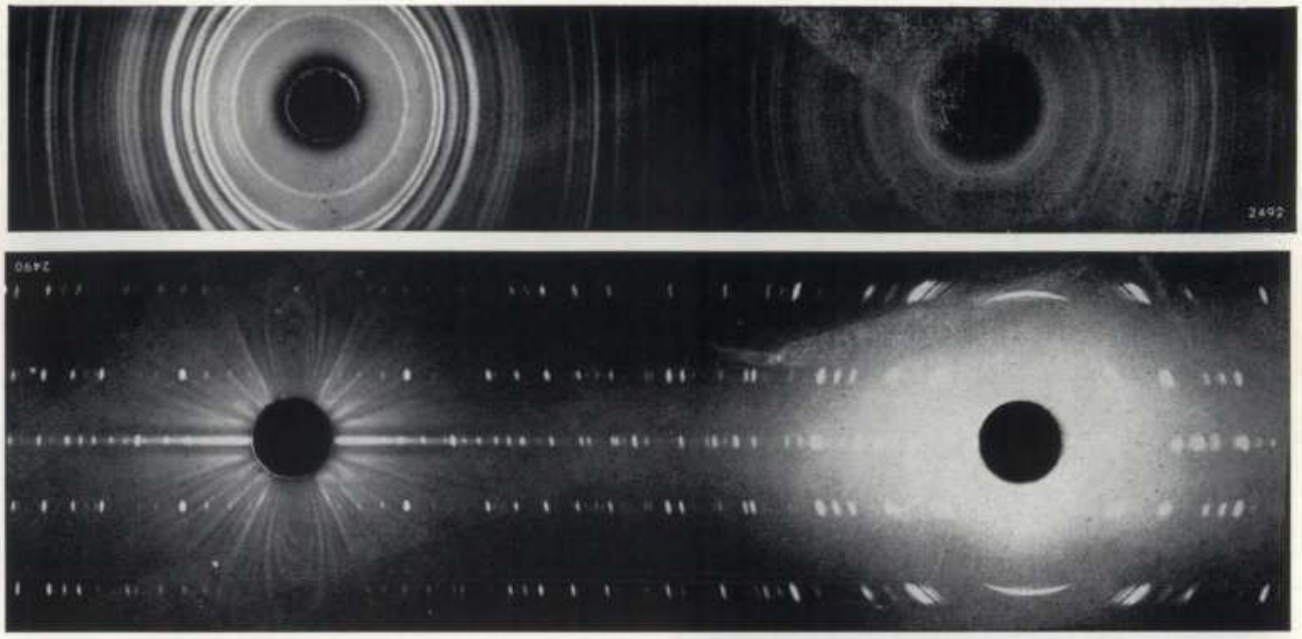
Er is reeds uiteengezet dat de elektronendichtheid van een kristal beschreven kan worden als een verzameling dichtheidsgolven. Iedere golf uit deze verzameling kan, onbeïnvloed door de andere golven, „reflecteren" op de manier die besproken is. Van belang is verder dat elke reflexie in het algemeen gescheiden van de andere reflexies kan worden opgevangen. (Aangezien geen twee golven in richting èn in golflengte gelijk zijn, „reflecteren" ze alle onder verschillende omstandigheden.) Dit geeft de mogelijkheid om van elke dichtheidsgolf de informatie te verkrijgen die in de reflexie ervan aanwezig is.

Het verzamelen van deze gegevens kan men vergemakkelijken als men bepaalde kunstgrepen toepast bij het bestralen. Zeer geschikt voor structuuronderzoek zijn de zg. weissenbergdiagrammen, doch ook laue-, debye-scherrer- en draaidiagrammen zijn hierbij vaak nuttig (zie *fig. 6*). Behalve

[6]) In de hier gegeven afleiding hebben we o.a. aangenomen dat een éénmaal afgebogen straal het kristal verlaat zonder nogmaals gereflecteerd te worden. De zg. „dynamische theorie", die o.m. systematisch met een meervoudige afbuiging rekening houdt, levert ietwat andere uitkomsten dan de hier gebruikte „kinematische theorie". Bij de meeste in de praktijk voorkomende kristallen blijkt de laatste theorie goed te voldoen; alleen moeten er soms correcties worden aangebracht (extinctiecorrecties). Anders is dit bij de zeer perfecte, foutvrije kristallen. Hier spelen „dynamische" effecten wel een grote rol. Zie b.v. L. P. Hunter, Anomalous transmission of X-rays by single crystal germanium, Proc. Kon. Ned. Akad. Wet. **B 61**, 214-219, 1958.

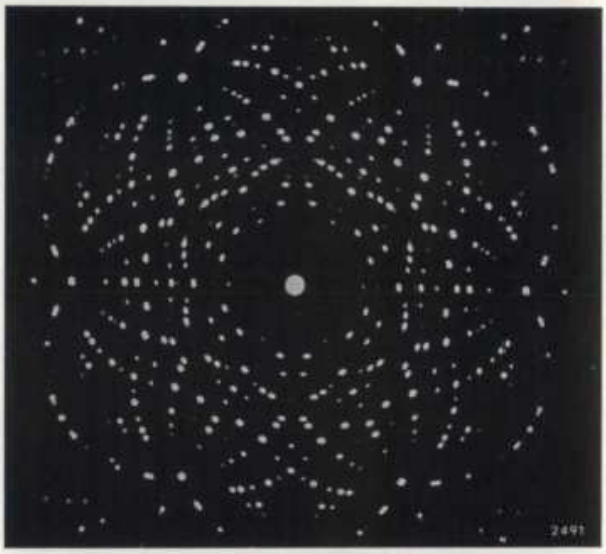
Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

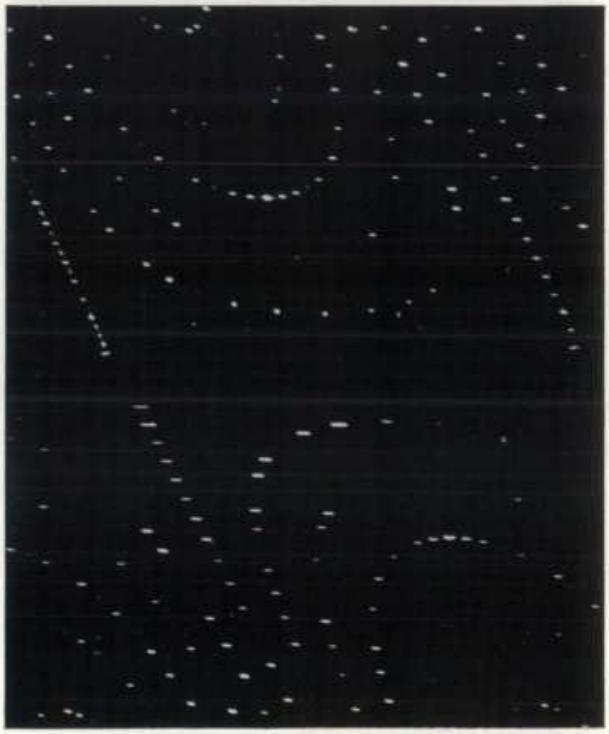


a

b



c



d

Fig. 6. Verschillende soorten röntgendiffractiediagrammen.
a) Debye-scherrerdiagram, verkregen door monochromatische bestraling van een poeder, dat uit verschillend georiënteerde kristalletjes bestaat. Dit soort diagrammen wordt veel gebruikt voor identificatie van kristallijne stoffen en om de grootte van de elementaire cel te bepalen.
b) Draaidiagram, verkregen door monochromatische bestraling van een draaiend eenkristal. De reflexies vormen, zoals men ziet, rechte lijnen („etages"). Uit de afstand tussen de etages kan men de periode berekenen in de richting van de as van draaiing. De grootte van de elementaire cel van een kristal wordt vaak bepaald door middel van drie draaidiagrammen. Het kristal wordt hierbij gedraaid om de richtingen van de drie kristallografische assen.
c) Lauediagram, verkregen door polychromatische bestraling van een stilstaand eenkristal. De symmetrie van kristallen komt in deze diagrammen fraai tot uiting. In dit geval is de symmetrie van het onderzochte kristal hexagonaal.
d) Weissenbergdiagram, verkregen door monochromatische bestraling van een draaiend eenkristal, waarbij de camera verschuift, in gelijke tred met de draaiing. Een scherm zorgt ervoor dat alleen die reflexies op de film komen welke in een draaidiagram een „etage" zouden vormen (zie *b*). De stippen op een weissenbergdiagram komen dus overeen met zo'n serie stippen op een rechte lijn in een draaidiagram, met het verschil echter dat, ten gevolge van de verschuiving van de camera, loodrecht op de richting van deze lijn, de stippen over de hele film zijn uitgestrooid. De verkregen spreiding alléén is reeds een voordeel: reflexies die op een draaidiagram samenvallende stippen geven, kunnen op een weissenbergdiagram afzonderlijk worden opgemeten. Maar belangrijker nog is het volgende: de plaats van de reflexies in een weissenbergdiagram hangt niet alleen af van de afbuigingshoek van de röntgenstraal *maar ook van de hoek waarover het kristal heeft moeten draaien om in reflexiestand te komen* (de verschuiving van de camera gebeurt immers met een snelheid evenredig aan die van de draaiing). De coördinaten van een reflexie in een weissenbergdiagram geven daardoor, behalve inlichtingen over de golflengte van de corresponderende dichtheidsgolf, ook inlichtingen over de richting van deze golf. Deze laatste informatie verkrijgt men niet of moeilijk met behulp van diagrammen, verkregen met stilstaande film. Bedenkt men verder dat men uit de intensiteiten van de reflexies ook nog de amplitudes van de dichtheidsgolven kan berekenen, dan begrijpt men dat weissenbergdiagrammen uitermate geschikt zijn als hulpmiddel voor het structuuronderzoek.

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

fotografisch, registreert en meet men de reflexies ook vaak met behulp van geigertellers, proportionele tellers of scintillatietellers [7]).

De grondslag voor structuuronderzoek

Vatten we al het voorgaande samen, dan blijkt duidelijk waarop het structuuronderzoek met röntgenstralen is gebaseerd:

De elektronendichtheid in een kristal kan worden beschreven als de som van een aantal fouriercomponenten. Elke dichtheidscomponent van een kristal geeft aanleiding tot een reflexie van röntgenstraling die ons de kennis verschaft van amplitude, golflengte en richting van deze dichtheidscomponent. Het totaal van de reflexies die men bij een kristal kan waarnemen, geeft een (vrijwel) volledig beeld van al de dichtheidscomponenten en dus in principe ook van de elektronenverdeling in een kristal. Het bepalen van deze elektronenverdeling — en daarmee van de structuur van het kristal — komt neer op het uitvoeren van een fouriersynthese, d.i. het optellen van de componenten van de fourierreeks die voor de functie gegeven zijn. Men geve zich rekenschap ervan dat het hier een driedimensionele fouriersynthese betreft. Een dergelijke synthese is buitengewoon ingewikkeld. Vaak zal men daarom volstaan met het uitvoeren van een- of tweedimensionele fouriersyntheses, waardoor men projecties van de structuur te zien krijgt (resp. projecties op een lijn en op een vlak). Uit twee of drie van zulke projecties kan men uiteraard eveneens afleiden wat de ruimtelijke bouw van het kristal is. (Dit komt goed uit in fig. 1.)

Het fazeprobleem

Hoe nabij de oplossing nu ook lijkt, het heeft nog heel wat voeten in de aarde alvorens men door samenstellen van de dichtheidscomponenten de bouw van een kristal kan bepalen. Schijnt er op het eerste gezicht niets anders nodig dan een optelling, bij nader inzien blijkt voor het uitvoeren hiervan nog een gegeven te ontbreken. We stuiten hierbij op een obstakel dat men kortweg als „het fazeprobleem" aanduidt. Het overwinnen van deze moeilijkheid kost de kristallograaf veelal het grootste deel van de tijd die hij aan het ophelderen van een kristalstructuur besteedt.

Om te kunnen komen tot een zinvolle superpositie, moeten niet alleen amplitude, golflengte en richting van de samenstellende golven bekend zijn, maar ook de faze van de golven (die door het argument van A_{hkl} in verg. (1) wordt gegeven). Dit is gedemonstreerd in *fig. 7*.

De faze van de dichtheidscomponenten onttrekt zich helaas aan de waarneming; ze kan niet, als de eerstgenoemde grootheden, uit de reflexies worden afgeleid. De intensiteit van een gereflecteerde straal is een maat voor de amplitude van de corresponderende dichtheidsgolf, maar leert niets over de faze ervan.

Het is aan deze omstandigheid te wijten dat we het diffractiepatroon van een kristal niet automatisch kunnen omzetten in een beeld van de elektronendichtheid in een kristal. Pas nadat, met aanstonds te bespreken methodes, de fazen zijn bepaald, kan de superpositie worden uitgevoerd en ontstaat het verlangde beeld van de elektronenwolken en daarmee van de plaatsing van de atomen of moleculen in een kristal.

Het bepalen van de fazen

Evenals de kennis van de fazen van de experimenteel gevonden reflexies ons in staat stelt een kristalstructuur te berekenen, is het ook omgekeerd mogelijk, uitgaande van een bekende structuur, de fazen te berekenen. Dit houdt een middel in waarmee het

[7]) Zie b.v. W. Parrish, E. A. Hamacher en K. Lowitzsch, De „Norelco" röntgendiffractometer, Philips techn. T. **16**, 253-264, 1954; P. H. Dowling, C. F. Hendee, T. R. Kohler en W. Parrish, Telbuizen voor röntgenstralen, Philips techn. T. **18**, 264-279, 1956.

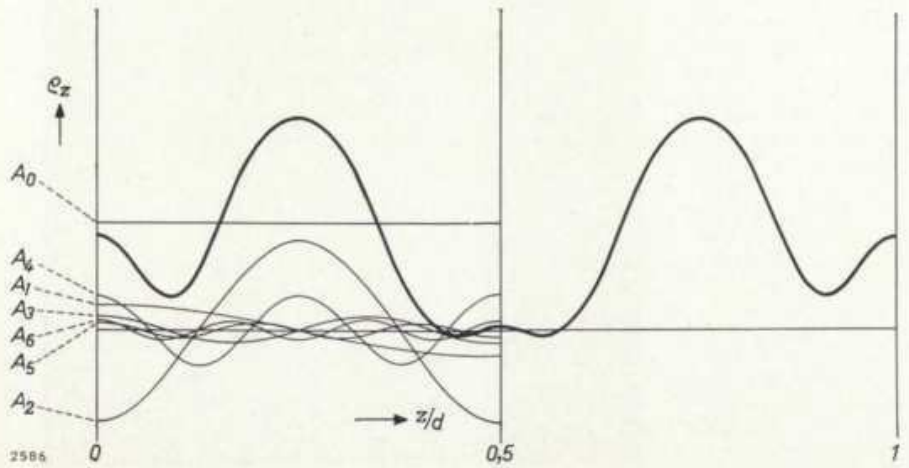


Fig. 7. Resultaat van een fouriersynthese, uitgevoerd met dezelfde fouriercomponenten als in fig. 2, met evenwel een andere faze van de component A_2. Men ziet dat het resultaat volkomen verschilt van de dichtheidsverdeling in fig 2.

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

fazeprobleem kan worden opgelost. Indien namelijk een model kan worden opgesteld dat de werkelijke structuur redelijk goed benadert, kunnen veelal de fazen van de sterkste reflexies met enige zekerheid worden vastgesteld. Deze gegevens worden dan gebruikt om een (onvolledige) fouriersynthese uit te voeren. Hoewel het hiermee verkregen beeld meestal nog erg grof is, geeft het vaak een betere benadering van de werkelijke structuur te zien dan het model. Met deze betere benadering kan nu een betere berekening van de fazen worden uitgevoerd, enz. Fazenberekening en fouriersynthese wisselen elkaar in deze procedure voortdurend af, en men verkrijgt stap voor stap een steeds beter beeld van de elektronendichtheid in het kristal.

De vraag is nog, hoe men tot het model komt dat als uitgangspunt voor de zojuist besproken procedure kan dienen. Bij het zoeken naar een geschikt model kan men zelden gebaande wegen volgen, het eist iedere keer opnieuw kristallografische ervaring, combinatievermogen en intuïtie van de onderzoeker. De vraag is steeds: wat weten we eigenlijk, ook buiten de röntgenografische gegevens, van het kristal in studie, waarop we een voorlopige gissing betreffende de structuur kunnen baseren?

In de eerste plaats weten we meestal, door chemische analyse, uit welke atomen het kristal bestaat. Wat elk atoom aan de verstrooiing bijdraagt, is voor alle elementen berekend en in tabellen gepubliceerd. We kunnen voorts de dichtheid van kristallen meten en uitrekenen hoeveel atomen per volume-eenheid voorkomen. Wat ons in het bijzonder interesseert, is hoeveel atomen een plaats hebben in de elementaire cel, daar we de afmetingen van deze cel uit het diffractiepatroon kunnen afleiden. Weten wij ten slotte hoeveel atomen van elke soort in deze ruimte van bekende afmetingen voorkomen, dan blijft als vraagstuk over, de rangschikking te vinden.

Natuurlijk zullen alleen die rangschikkingen in aanmerking komen die in overeenstemming zijn met de eigenschappen van het kristal (chemische, optische, magnetische, morfologische en vooral ook symmetrie-eigenschappen). Door met deze gegevens rekening te houden, kan men vaak vele mogelijkheden elimineren, doch dit is zelden voldoende om alle op één na uit te sluiten. Boekt men evenwel bij deze eliminatie zoveel resultaat dat het overschot aan modellen betrekkelijk gering is, dan loont het de moeite ze stuk voor stuk te „proberen". Zo komt men tot de zg. „trial and error"-methode.

Een belangrijk hulpmiddel voor het opstellen van een model is de kennis van de interatomaire afstanden. Kennis hieromtrent is nuttig voor het beschreven elimineringsproces en is vaak zelfs beslissend voor het slagen van het onderzoek.

Om afstanden tussen atomen in een kristal in grootte en richting te bepalen (N.B. niet de plaats van de desbetreffende atomen), staat ons de methode van Patterson ten dienste. Deze methode berust op het verband tussen deze afstanden en de intensiteiten van de reflexies. Ze bestaat in eerste instantie uit het uitvoeren van fouriersyntheses met deze intensiteiten als fouriercomponenten (pattersonsyntheses). Dit kan gebeuren *zonder dat de fazen van de reflexies bekend zijn.*

We willen aantonen dat men inderdaad uit de intensiteiten iets over de atoomafstanden te weten kan komen. We schrijven daarvoor eerst formule (1) in een eenvoudiger notatie:

$$\varrho(\mathbf{r}) = \sum_{\mathbf{H}} A_{\mathbf{H}}\, e^{2\pi i\, \mathbf{H}\cdot\mathbf{r}} \quad . \quad . \quad . \quad . \quad . \quad . \quad (7)$$

waarin $\mathbf{r}$ staat voor x, y en z, en $\mathbf{H}\cdot\mathbf{r}$ voor $h\frac{x}{a} + k\frac{y}{b} + l\frac{z}{c}$.

We zullen nu uit deze gelijkheid een andere afleiden, waarbij we ervoor kunnen zorgen dat in de vergelijking intensiteiten komen te staan. Daartoe moeten we letten op de volgende punten: a) $A_{\mathbf{H}}$ is in het algemeen een complexe grootheid; b) het kwadraat van de modulus van deze grootheid, $|A_{\mathbf{H}}|^2$, ofwel $A_{\mathbf{H}}A^*_{\mathbf{H}}$, indien * toegevoegd complex betekent, hangt volgens verg. (6) als volgt samen met de intensiteit $I_{\mathbf{H}}$ van de corresponderende reflexie:

$$A_{\mathbf{H}}A^*_{\mathbf{H}} = \frac{I_{\mathbf{H}}}{V^2} \quad . \quad . \quad . \quad . \quad . \quad . \quad . \quad . \quad (8)$$

Uiteraard geldt verg. (7) ook voor de toegevoegd complexen van de in deze vergelijking voorkomende grootheden; eveneens blijft de vergelijking geldig indien we voor de onafhankelijk variabele $\mathbf{r}$ schrijven $\mathbf{r}-\mathbf{u}$, waar $\mathbf{u}$ een willekeurig gekozen parameter is. (Met deze kunstgreep wordt de interatomaire afstand $\mathbf{u}$ erin gebracht, zoals we dadelijk zullen zien.) Dus kunnen we schrijven:

$$\varrho^*(\mathbf{r}-\mathbf{u}) = \sum_{\mathbf{H}} A^*_{\mathbf{H}}\, e^{-2\pi i\, \mathbf{H}\cdot(\mathbf{r}-\mathbf{u})} \quad . \quad . \quad . \quad (9)$$

Vermenigvuldigen van (7) en (9), waarbij we ter onderscheiding de coëfficiëntenvector in (9) met $\mathbf{H}'$ aanduiden, geeft:

$$\varrho(\mathbf{r})\varrho^*(\mathbf{r}-\mathbf{u}) = \sum_{\mathbf{H}}\sum_{\mathbf{H}'} A_{\mathbf{H}}A^*_{\mathbf{H}'}\, e^{2\pi i\, \mathbf{H}'\cdot\mathbf{u}}\, e^{2\pi i(\mathbf{H}-\mathbf{H}')\cdot\mathbf{r}} \quad . \quad . \quad . \quad . \quad (10)$$

Bij $\varrho^*(\mathbf{r}-\mathbf{u})$ zullen we verder het teken * weglaten, want deze grootheid is reëel en dus identiek aan het toegevoegd complexe ervan. Als men nu aan beide zijden integreert over het gehele volume van de elementaire cel, krijgt men:

$$\int_V \varrho(\mathbf{r})\varrho(\mathbf{r}-\mathbf{u})\, dV(\mathbf{r}) =$$

$$= \sum_{\mathbf{H}}\sum_{\mathbf{H}'} A_{\mathbf{H}}A^*_{\mathbf{H}'}\, e^{2\pi i\, \mathbf{H}'\cdot\mathbf{u}} \int_V e^{2\pi i(\mathbf{H}-\mathbf{H}')\cdot\mathbf{r}}\, dV(\mathbf{r}). \quad (11)$$

De integraal rechts is altijd nul, behalve indien $\mathbf{H} = \mathbf{H}'$, waarvoor hij gelijk aan V is. Gebruik makend van (8) mogen we dus voor (11) schrijven:

$$\int_V \varrho(\mathbf{r})\varrho(\mathbf{r}-\mathbf{u})\, dV(\mathbf{r}) = \frac{1}{V}\sum_{\mathbf{H}} I_{\mathbf{H}}\, e^{2\pi i\, \mathbf{H}\cdot\mathbf{u}} \quad . \quad . \quad . \quad (12)$$

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

Het rechterlid stelt een fouriersommatie voor, uitgevoerd met intensiteiten in plaats van amplitudes. Men vergelijke (12) met (7). De betekenis van deze zg. pattersonfunctie ziet men aan het linkerlid: het is een volume-integraal van het produkt van twee elektronendichtheden op plaatsen die op vectorafstanden **u** van elkaar liggen. Men realisere zich dat dit inhoudt dat deze integraal grote waarden zal krijgen als **u** een afstand is tussen maxima in elektronendichtheid, dat wil dus zeggen: als **u** een in het kristal werkelijk optredende atoomafstand is. Als we een fouriersynthese uitvoeren met de intensiteiten van de reflexies als fouriercoëfficiënten, verkrijgen we dus een functie waarvan de maxima aanwijzingen geven over de atoomafstanden.

De met behulp van de methode van Patterson verkregen aanwijzingen omtrent de atoomafstanden zijn soms zo duidelijk dat ze de hele structuur openbaren, soms werpen ze alleen licht op enkele details van de structuur. Veel hangt ook af van de vindingrijkheid van de onderzoeker bij de interpretatie van de pattersonsynthese. Hoe het ook zij, altijd is informatie aanwezig waarmede bij het opstellen van het model rekening kan worden gehouden.

We wijzen ten slotte op het bestaan van methodes die direct, dus niet via modellen, tot de gezochte faze voeren. Het zijn o.a. de „methode van de ongelijkheden", die gebaseerd is op het feit dat de elektronendichtheid in een kristal nergens negatief kan zijn, en de „statistische methode", waarbij gebruik wordt gemaakt van de kennis van de atomen waaruit het kristal is opgebouwd. Meer hierover vindt men b.v. in de in noot [4]) aangehaalde publikatie van Bouman.

Hiermee is de weg van een kristallografische analyse in grote lijnen getekend. We willen nu nog iets zeggen over de „strategie" van het onderzoek.

We hebben gezien dat elke reflexie correspondeert met een dichtheidscomponent en inlichtingen geeft over zijn amplitude, golflengte en richting. Voorts dat men, om de faze te kunnen berekenen, een model opstelt. Nu bewijst elk verkeerd gekozen model pas na een tijdrovend procédé dat het onjuist is. Uitgaan van minder waarschijnlijke gissingen moet daarom zoveel mogelijk vermeden worden. Men kan de tijd beter gebruiken met het zoeken naar een model waarmee men veilig in zee kan gaan, doch ook dit mag natuurlijk niet te lang duren. Heel belangrijk in de kristallografie is dan ook de „kunst" om aan de hand van de beschikbare gegevens de kortste weg te kiezen die naar dit model leidt. Aangezien de gegevens van waaruit men te werk gaat, voor elk geval anders zijn, moet men voor elk kristal bedacht zijn op andere mogelijkheden en moeilijkheden, en zal men steeds andere wegen moeten kiezen. Vaak komt later nog de vraag op of het juist is bij een eenmaal gemaakte keuze te volharden, nl. als de weg niet direct tot resultaten leidt. Zoekend en twijfelend kan de kristallograaf dan maanden bezig zijn aleer hij kleine voortekenen van succes opmerkt, die erop wijzen dat hij uiteindelijk dan toch kan overgaan tot de eigenlijke precisering van de structuur. Dit zoeken en tasten geeft aan een structuurbepaling telkens weer de bekoring en spanning van het avontuur.

Voorbeelden

Na aldus in grote lijnen te hebben geschetst hoe een structuurbepaling gewoonlijk verloopt, geven we nu voor een drietal gevallen een beschrijving die meer in detail treedt; eerst twee heel eenvoudige gevallen waarin het bovenstaande slechts ten dele gebruikt werd, en daarna een ingewikkelde structuur die een bredere aanpak noodzakelijk maakte.

Onderzoek van de verbinding $Al_{0,89}Mn_{1,11}$

Reeds omstreeks 1900 was het bekend dat verschillende legeringen van mangaan magnetische eigenschappen bezitten, hoewel mangaan op zich zelf onmagnetisch is (legeringen van Heusler) [8]). Ook de verbinding $Al_{0,89}Mn_{1,11}$ is gebleken geschikt te zijn als materiaal voor permanente magneten. Men was geïnteresseerd in de samenhang tussen de magnetische verzadiging en de structuur van deze stof.

Het structuuronderzoek verliep buitengewoon vlot. Het debye-scherrerdiagram bracht aan het licht dat de (tetragonale) elementaire cel zeer klein is, wat deed voorzien dat er niet veel verschillende mogelijkheden van rangschikking zijn. Er bleek vervolgens uit de dichtheid en de chemische formule dat de cel zelfs niet meer dan twee atomen bevat. Ten slotte liet de gevonden symmetrie ons geen andere keus dan de atomen op de hoekpunten en in het centrum te plaatsen.

Het gebeurt niet vaak dat men reeds in dit stadium van onderzoek met zo'n nauwkeurigheid de atoomposities kan bepalen. We herinneren even aan de gebruikelijke gang van zaken: in dit stadium zouden de atoomplaatsen ongeveer bekend kunnen zijn, en zou men, uitgaande van het ruwe model, kunnen proberen met behulp van fouriersyntheses een beter beeld van de structuur te krijgen. Dit was dus in dit geval niet nodig, doordat de symmetrie reeds de weg gewezen had naar scherp gedefinieerde posities voor de atomen.

[8]) Fr. Heusler, Über Manganbronze und über die Synthese magnetisierbarer Legierungen aus unmagnetischen Metallen, Z. angew. Chem. **17**, 260-264, 1904.

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

De structuurbepaling zou hiermee geëindigd zijn, ware het niet dat uit de stoechiometrische formule $Al_{0,89}Mn_{1,11}$ blijkt dat de aluminium- en mangaanatomen onmogelijk in een volkomen regelmatige rangschikking in het kristal kunnen voorkomen. Bij een rangschikking van b.v. alle aluminiumatomen op de hoekpunten en alle mangaanatomen in de centra zou de formule AlMn moeten zijn. Dit wees erop dat de atomen niet zo sterk aan hun eigen positie in de cel gebonden zijn, dat met andere woorden aluminiumatomen zich wel eens op de plaats van mangaanatomen kunnen bevinden, en omgekeerd (waarbij dit laatste geval zou moeten overheersen).

In gevallen als deze zal men willen weten in welke verhoudingen de diverse soorten atomen op de verschillende plaatsen voorkomen. Ook zulke inlichtingen kan men halen uit de intensiteiten van de reflexies. Berekent men in dit geval de intensiteiten van de reflexies door uit te gaan van een regelmatig gevulde elementaire cel, dus b.v. met één mangaanatoom op plaats A (hoekpunt) en één aluminiumatoom op plaats B (centrum), dan verkrijgt men uitkomsten die afwijken van de waargenomen waarden. De beschreven willekeurige verdeling van de atomen heeft voor de intensiteiten van de reflexies het effect alsof op elke atoomplaats niet één bepaald atoom, maar fracties van verschillende atomen aanwezig zijn. De fracties van de verschillende atomen op één plaats moeten uiteraard te zamen één opleveren, en telt men de fracties van dezelfde atomen in hun verschillende posities bij elkaar op, dan moet de som natuurlijk in overeenstemming zijn met de chemische formule. Vandaar dat men in ons geval het volgende schema kan opstellen:

	plaats A	plaats B
aluminium	r	$0{,}89 - r$
mangaan	$1 - r$	$0{,}11 + r$

r is hier de fractie van het aantal plaatsen A die door aluminiumatomen zijn bezet.

Men berekent nu voor verschillende waarden van r de intensiteiten van de reflexies en men gaat na bij welke waarde van r de overeenstemming met de waargenomen intensiteiten zo goed mogelijk is. In ons geval bedroeg deze waarde 0,03.

Ten slotte de kwestie, of deze structuur beantwoordt aan de magnetische eigenschappen van de stof. Er is b.v. gevonden dat de magnetische verzadiging bij mechanische deformatie afneemt. Bij het zoeken naar een verklaring van dit verschijnsel ontdekte men dat r onder deze omstandigheden toeneemt (tot 0,13).

Dit betekent dus dat de daling van de magnetische verzadiging gepaard gaat met een toeneming van het aantal mangaanatomen op de „verkeerde" B-plaatsen (we kijken slechts naar de mangaanatomen, omdat alleen deze een magnetisch moment hebben). Men trok hieruit de conclusie dat het magnetische moment van de mangaanatomen op de B-plaatsen tegengesteld gericht is aan die van de mangaanatomen op de A-plaatsen.

We zullen nu niet verder hierop ingaan, maar we voegen er aan toe dat een neutronendiffractieonderzoek een bevestiging gaf van deze conclusie. Daarbij kon het verloop van de magnetische verzadiging ook kwantitatief in overeenstemming worden gebracht met dit beeld van de structuur.

Onderzoek van de verbinding Th_2Al

Bij een onderzoek over thorium-aluminiumverbindingen, welke van belang zijn wegens hun gasbindende eigenschappen (getterwerking), is de structuur bepaald van Th_2Al [9]). Het is een voorbeeld van een vrij eenvoudige structuurbepaling, die zonder fouriersynthese met behulp van de „trial and error"-methode kon worden uitgevoerd.

In de elementaire cel (wederom van tetragonale symmetrie) kwamen ditmaal vier aluminium- en acht thoriumatomen voor. De aluminiumatomen konden onmiddellijk op grond van de symmetrie van het kristal geplaatst worden op speciale punten in de cel (zoals dat bij het eerste voorbeeld het geval was voor alle atomen). Van de acht thoriumatomen was niet direct te zeggen waar ze zich moesten bevinden. De taak om de 24 coördinaten van deze atomen te bepalen, werd gelukkig vereenvoudigd doordat de symmetrie het aantal mogelijkheden in sterke mate beperkt, en wel in deze zin dat de keus van één van de coördinaten al de andere 23 vastlegt.

Er werd verder als volgt te werk gegaan: verschillende waarden van deze coördinaat werden gekozen, met de verkregen modellen werden de intensiteiten van de reflexies berekend, en vervolgens werden de uitkomsten vergeleken met de waargenomen intensiteiten. Zo werd hier door „trial and error" de structuur bepaald.

Ook hier kon de gevonden structuur de eigenschappen van de onderzochte stof doen begrijpen. De structuur bevat vrij grote, tetraëdrische, holten (zie *fig. 8a* en *b*). Men kan zich voorstellen dat deze holten samenhangen met de gasbindende eigenschappen van de stof. Dit vermoeden zou later

[9]) Zie ook P. B. Braun en J. H. N. van Vught, Acta cryst. **8**, 246, 1955.

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

bevestigd worden door metingen van kernspinresonantie [10]) en door een neutronendiffractieonderzoek waarmee de aanwezigheid van gasatomen of gasionen in deze holten aangetoond kon worden.

maken van de kennis opgedaan bij eenvoudige, verwante structuren. We vermoedden b.v. in dit geval dat gedeelten van de structuur gelijken moesten op de structuur van spinel [12]).

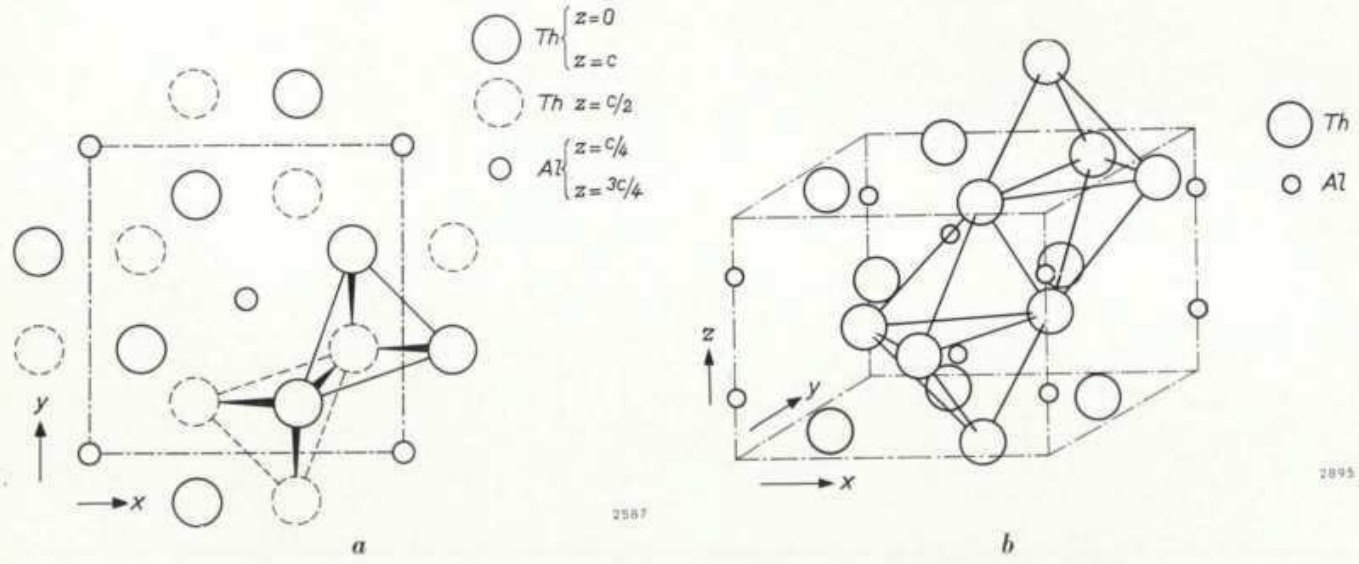


Fig. 8. De elementaire kristalcel van Th_2Al, een vangstof voor gassen. In de figuur zijn enkele, door thoriumatomen gevormde, tetraëders aangegeven. Bij absorptie van gassen worden de gasatomen of gasionen in de holten van deze tetraëders opgenomen. *a*) De posities van de atomen in een projectie langs de *c*-as (5,86 Å). De projectiehoogte (*z*) is in fracties van de *c*-as vermeld. De *x*- en *y*-richtingen zijn de richtingen van de *a*- en *b*-as (beide 7,62 Å). *b*) De posities van de atomen in een ruimtelijke voorstelling. De *x*-, *y*- en *z*-richtingen zijn wederom de richtingen van resp. de *a*-, *b*- en *c*-as.

Onderzoek van de verbinding $Y\text{-}Ba_2Zn_2Fe_{12}{}^{III}O_{22}$

Thans als laatste voorbeeld de bepaling van een zeer ingewikkelde structuur. $Y\text{-}Ba_2Zn_2Fe_{12}{}^{III}O_{22}$ is één van de stoffen uit de groep van keramische magnetische materialen die met de naam ferroxplana worden aangeduid [11]). Deze materialen, welke in eigenschappen gelijkenis vertonen met de bekende ferroxcube-materialen, zijn tot nog hogere frequenties dan deze bruikbaar ($>$ 100 MHz).

Reeds uit het feit dat de elementaire cel in dit geval 114 atomen bevat, nl. 6 barium-, 36 ijzer-, 6 zink- en 66 zuurstofatomen, kan men begrijpen dat het onderzoek aanzienlijk moeilijker was dan de twee voorafgaande. De beschrijving van het verloop van dit onderzoek, waarbij we alleen de grote lijnen zullen aangeven, geeft er een goed beeld van hoe men in het algemeen zulke ingewikkelde structuren aanpakt.

Aan het onderzoek van een dergelijke structuur zou niet te beginnen zijn als men niet gebruik kon

Met behulp van debye-scherrerdiagrammen, lauediagrammen en draaikristalopnamen (de eerste verkregen met een röntgendiffractometer) werd bepaald dat het kristal hexagonaal is en dat de elementaire cel één zeer lange ribbe heeft (*c*-as: 43,6 Å) en twee korte (*a*- en *b*-as: 5,9 Å).

Het eerste doel dat we ons stelden, was de plaats te vinden van de zwaarste atomen, die van barium, ijzer en zink. Deze dragen het meest bij aan de verstrooiing en beheersen daardoor het intensiteitsbeeld van de reflexies. Daarom moet eerst de positie van zulke atomen nauwkeurig bekend zijn. Daarna heeft het pas zin naar de plaats van de lichtere atomen te gaan zoeken. Ook kon in dit stadium nog geen onderscheid worden gemaakt tussen ijzer- en zinkatomen, omdat het verschil in verstrooiend vermogen van deze atomen betrekkelijk gering is.

Er werd aangenomen — op grond o.a. van analogieën — dat we hier te doen hebben met een structuur van lagen loodrecht op de lange as, voornamelijk bestaande uit dicht opeengepakte zuurstof- en bariumatomen met in de holten ertussen de meeste andere atomen. We probeerden nu eerst vast te

[10]) Zie D. J. Kroon, Kernspinresonantie, Philips techn. T. **21**, 278-292, 1959, speciaal blz. 290.

[11]) Zie P. B. Braun, The crystal structures of a new group of ferromagnetic compounds, Philips Res. Repts. **12**, 491-548, 1957, en G. H. Jonker, H. P. J. Wijn en P. B. Braun, Philips techn. T. **18**, 253-262, 1956.

[12]) Vgl. E. J. W. Verwey, P. W. Haaijman en E. L. Heilmann, Philips techn. T. **9**, 186, 1947.

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info

stellen in welke lagen deze bariumatomen voorkomen. Het is daarvoor voldoende de projectie op de lange as te bestuderen. In een later stadium volgt de bepaling van de projectie van de structuur op een vlak, en ten slotte de bepaling van de driedimensionele structuur.

Een eendimensionele pattersonsynthese gaf informatie over de afstanden tussen de atomen in hun geprojecteerde positie (*fig. 9*). We zien hierin een hoge piek bij 3,2 Å. Deze piek werd als aanwijzing opgevat dat de bariumatomen zich op die afstand van elkaar bevinden. De kennis van deze afstand (hoe onnauwkeurig overigens ook door de breedte van de piek) gaf de doorslag bij de keus tussen een aantal modellen die op grond van analogieën reeds waren opgesteld. Met het verkregen model gingen we aan het werk voor het berekenen van fazen van reflexies.

Men moet overigens niet denken dat dit model een tot in details uitgewerkte structuur was: al de lichte atomen en zelfs een deel van de ijzeratomen (zinkatomen) waren eruit weggelaten. Bovendien betrof het nog slechts een projectie. Met behulp van dit onvolledige model werd van 15 reflexies de faze berekend, en daarna werd een fouriersynthese uitgevoerd. Het verkregen beeld bevatte, zoals we gehoopt hadden, een groot aantal aanwijzingen over

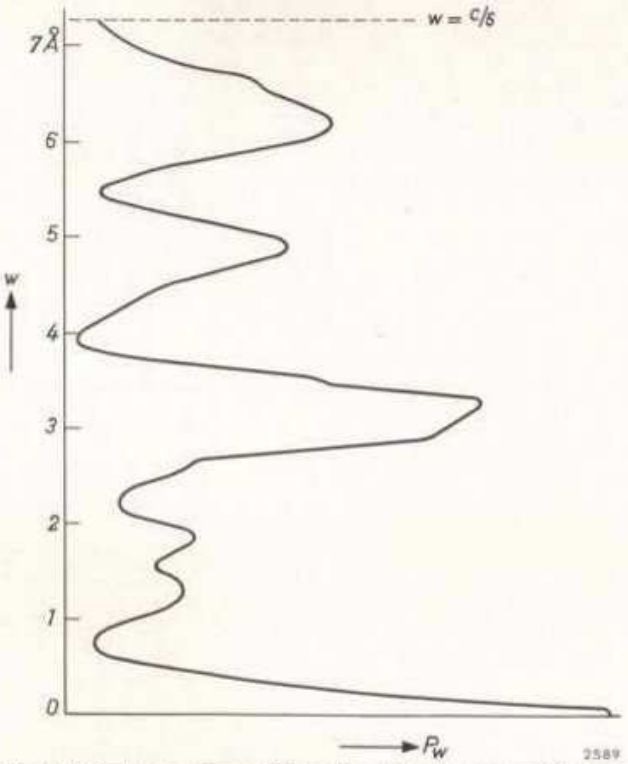


Fig. 9. Resultaat van eendimensionele pattersonsynthese $P(w)$, uitgevoerd met reflexies van Y-$Ba_2Zn_2Fe_{12}{}^{III}O_{22}$. De w-richting is de richting van de c-as. De verschillende pieken geven informatie over de projecties van voorkomende atoomafstanden op genoemde richting. De piek bij 3,2 Å wees op het voorkomen van een dergelijke afstand in projectie tussen bariumatomen. Met behulp van deze aanwijzing kon het eerste, voorlopige, model worden opgesteld.

vermoedelijke liggingen van de andere atomen, zodat gewaagd kon worden nieuwe modellen te maken, die successievelijk met steeds meer van de nog niet gebruikte ijzeratomen werden aangevuld. Bij het opstellen van deze modellen werd wederom (en later gebeurde dit nog verscheidene malen) de pattersonsynthese geraadpleegd, er werd nl. steeds nagegaan of de gekozen modellen hiermede niet in strijd waren.

Het model dat alle ijzeratomen bevatte, bleek weer een goede vooruitgang te geven, maar toch niet een zodanige dat we nu ook konden gaan onderscheiden tussen de ijzer- en zinkatomen en we ook de lichte zuurstofatomen konden gaan plaatsen. We hadden de indruk dat dit kwam doordat één van de ijzeratomen nog niet op zijn juiste plaats was aangebracht. Naar analogie van de rangschikking bij andere structuren hadden we dit een plaats gegeven in een zelfde vlak als de bariumatomen. Er werden een aantal andere posities geprobeerd, aanvankelijk met weinig succes. Een gelukkige greep bleek het ten slotte, het ijzeratoom iets buiten het vlak te brengen waarin de bariumatomen waren geplaatst. Hierna kon de structuurbepaling zonder grote moeilijkheden met succes worden voortgezet en uitgebreid tot de tweedimensionele en de driedimensionele structuur, waarbij ook de zink- en de zuurstofatomen konden worden gelocaliseerd. Interessant is dat hierbij werd gevonden dat de zinkatomen en een deel van de ijzeratomen op dezelfde plaatsen voorkomen. (Precies dus zoals het geval was bij de mangaan- en aluminiumatomen in $Al_{0,89}Mn_{1,11}$.) Zo werd in etappes het einddoel bereikt. De *figuren 10, 11* en *12* markeren het einde van de drie belangrijkste etappes.

Het resultaat van een eendimensionele fouriersynthese (projectie op de c-as), uitgevoerd nadat alle vereiste fazen berekend waren, is te zien in fig. 10. We wijzen op de kleine piek naast de grote piek van het bariumatoom: het ijzeratoom dat zoveel last veroorzaakte. Een tweedimensionele fouriersynthese — op analoge wijze verkregen, met behulp van tweedimensionele modellen en de daarmee berekende fazen van reflexies — geeft de elektronendichtheid aan van de op een vlak geprojecteerde structuur (fig. 11). Projecteert men de pieken in deze figuur op de c-as, dan krijgt men weer het beeld van fig. 10. Ten slotte is in fig. 12 de gevonden driedimensionele structuur in beeld gebracht [13]). Kijkt men hier langs

[13]) We konden in het kader van dit artikel geen volledige beschrijving geven van de bepaling. Zo is niet de toepassing vermeld van de methode van de kleinste kwadraten, verschilfouriersyntheses enz. Voor een volledige bespreking verwijzen we naar het in [11]) aangehaalde artikel in Philips Res. Repts.

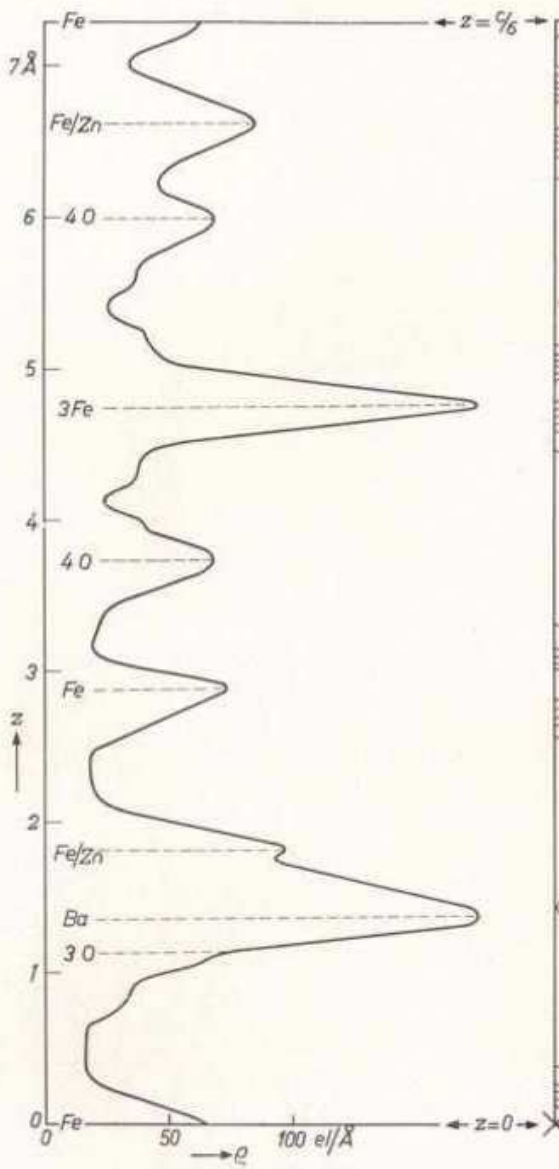


Fig. 10

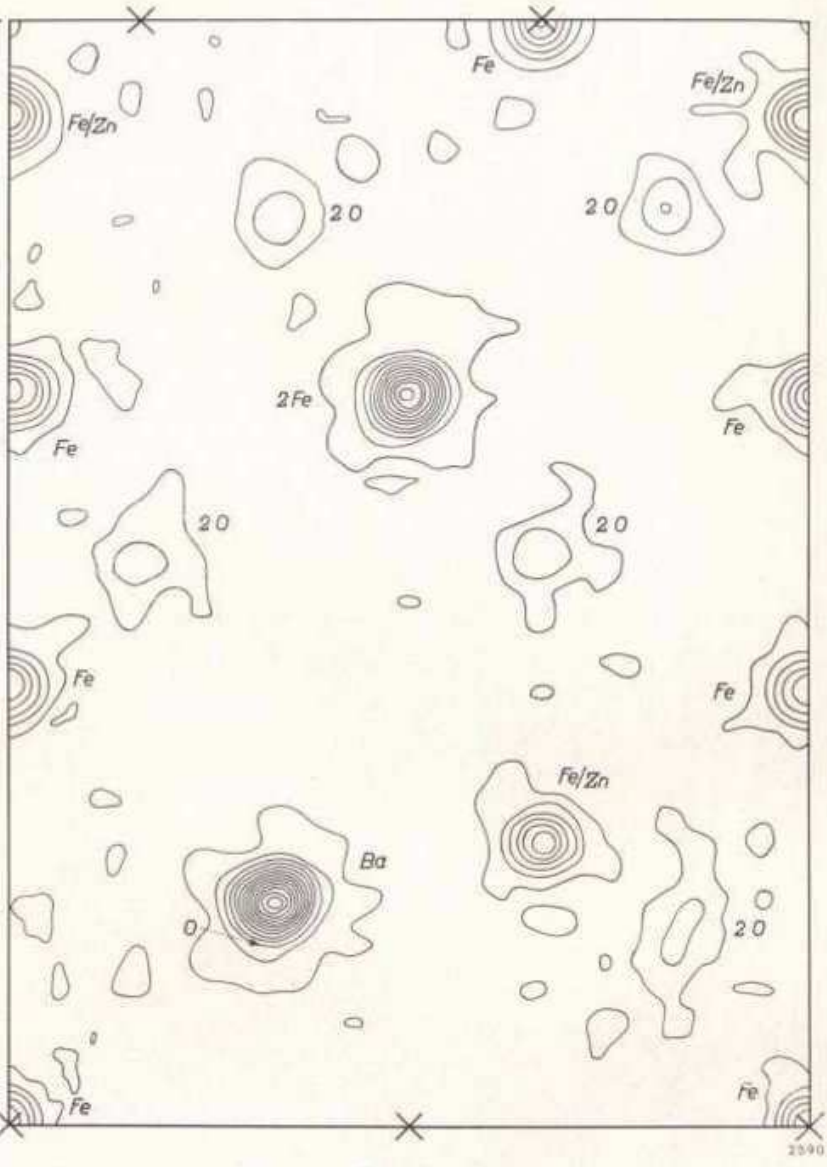


Fig. 11

Fig. 10. Resultaat van eendimensionele fouriersynthese, uitgevoerd met de reflexies van Y-$Ba_2Zn_2Fe_{12}^{III}O_{22}$. De curve geeft het verloop van de elektronendichtheid (in elektronen per ångström) van de op de *c*-as (*z*-richting) geprojecteerde celinhoud. De posities van de verschillende geprojecteerde atomen zijn door chemische symbolen aangegeven. De eerste etappe van het onderzoek, waarbij alleen de projectie op de *c*-as werd beschouwd, was hiermee tot een eind gekomen. Voor het zover was, had het vooral moeite gekost om te bepalen waar zich het ijzeratoom (zinkatoom) bevond waarvan in deze afbeelding nog juist de piek te zien is, naast de grote piek van het bariumatoom. Voor het resultaat van de tweede etappe van het onderzoek, zie fig. 11.

Fig. 11. Resultaat van tweedimensionele fouriersynthese, uitgevoerd met reflexies van Y-$Ba_2Zn_2Fe_{12}^{III}O_{22}$. De inhoud van de elementaire cel is op een vlak geprojecteerd. De „hoogtelijnen" hierin verbinden plaatsen van gelijke elektronendichtheid. De hoge „bergtoppen" geven de aanwezigheid van atomen aan waarvan de aard nader is aangeduid met chemische symbolen. De kleine pieken in de verkregen kaart zijn een gevolg van onvermijdelijke experimentele fouten. De kruisjes zijn centra van symmetrie. De *z*-richting is de richting van de *c*-as. Het verband met het resultaat in fig. 10 is duidelijk als men de atomen geprojecteerd denkt op de *c*-as.

Fig. 12. Driedimensioneel model van een deel van de elementaire cel van Y-$Ba_2Zn_2Fe_{12}^{III}O_{22}$. De bollen in groen, rood, blauw en geel geven de plaats aan van resp. bariumatomen, ijzeratomen in octaëdrische holten, ijzer- of zinkatomen in tetraëdrische holten, en zuurstofatomen. De lange *c*-as is verticaal getekend (*z*-richting). Projecteert men langs de *a*-as (*x*-richting), dan verkrijgt men dezelfde projectie als in fig. 11. Duidelijk kan men, in deze driedimensionele voorstelling, lagen onderscheiden bestaande uit dicht opeengepakte zuurstof- en bariumatomen. In de holten ertussen bevinden zich de ijzer- en zinkatomen. Andere belangrijke trekken van de structuur zijn: de aanwezigheid van centra van symmetrie (alleen te zien bij *A*) en van drietallige assen parallel met de *c*-as (niet getekend). *S* geeft een blok aan dat dezelfde structuur heeft als spinel. Dat de holten zowel door vier als door zes zuurstofatomen kunnen zijn omgeven (resp. tetraëdrische en octaëdrische holten) is goed te zien bij resp. *B* en *C*. *B* is tevens het in de tekst genoemde ijzeratoom (zinkatoom) dat bij de analyse de meeste moeite gaf.

Digitized in Heiloo the Netherlands

11/14/2023

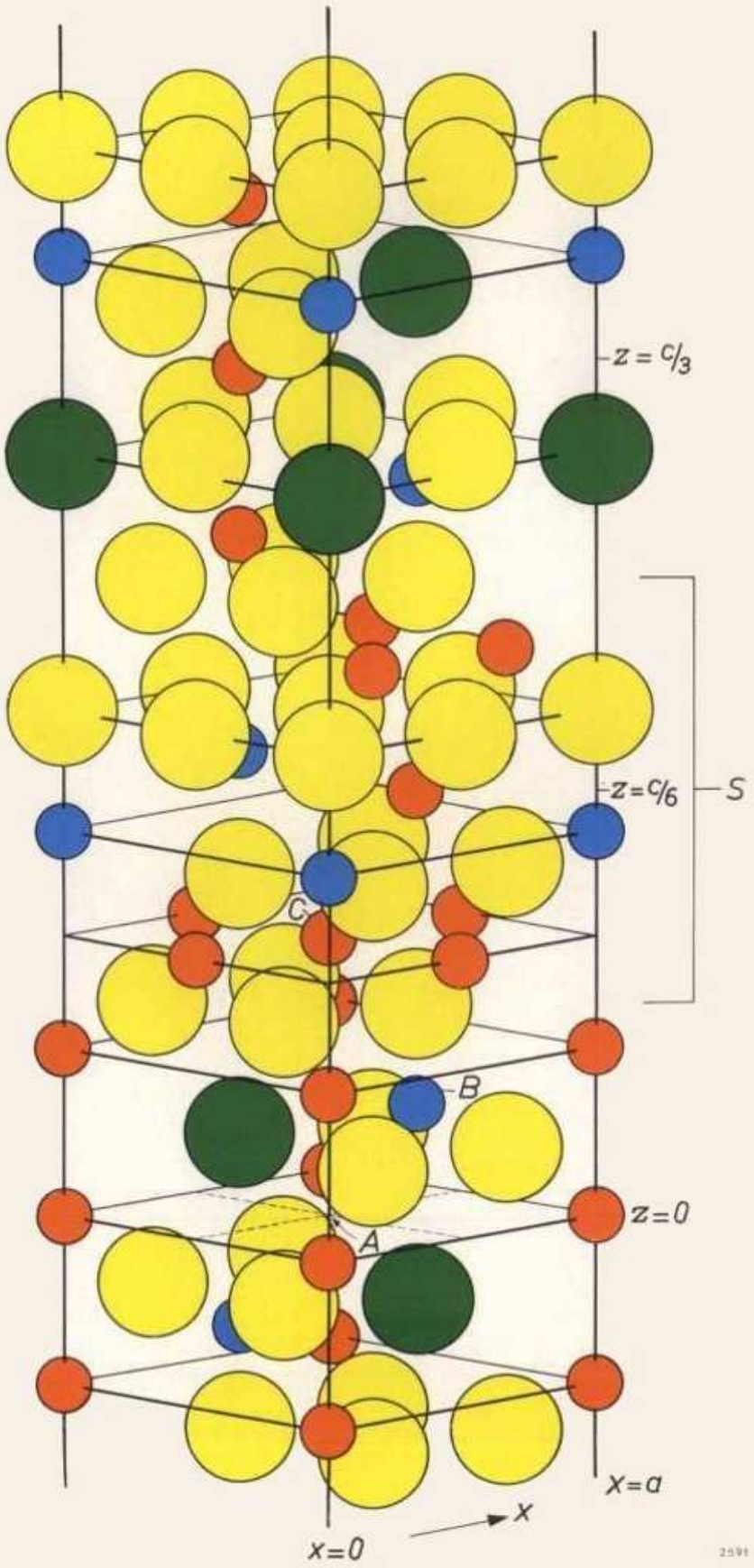


Fig. 12

Not for sale!

11/14/2023

de *a*-as, dan herkent men gemakkelijk de projectie die in fig. 11 gegeven is.

We vestigen de aandacht op de belangrijkste trekken van de aldus bepaalde structuur. De ijzeratomen bevinden zich in octaëdrische of tetraëdrische holten (dit is goed te zien bij resp. het atoom *C* en het atoom *B* in fig. 12). De tetraëdrische holten kunnen in plaats van met ijzeratomen, ook gevuld zijn met zinkatomen. Verder treft men aan weerszijden van centra van symmetrie (b.v. *A* in fig. 12) bariumatomen aan, die betrekkelijk dicht bij elkaar gelegen zijn en zich bevinden in verschillende, opeenvolgende lagen (dit was reeds gebleken, zoals men zich zal herinneren, uit het resultaat van de eendimensionele pattersonsynthese, in fig. 9). Door de nabijheid van deze atomen is het ijzeratoom (zinkatoom) *B* enigszins „weggedrukt", en hierdoor ligt dit atoom buiten het vlak dat men loodrecht op de *c*-as door de bariumatomen kan aanbrengen (ook dit was reeds in een vroeger stadium aan het licht gekomen, zie fig. 10).

De verkregen kennis van de structuur is o.m. gebruikt om de magnetische wisselwerkingen tussen de diverse ijzeratomen te schatten, op de manier als reeds eerder in dit tijdschrift beschreven is [11]). Hierbij werd gevonden dat alle ijzeratomen in tetraedrische holten gelijkgerichte magnetische momenten hebben en dat die van de ijzeratomen in octaedrische holten voor het merendeel tegengesteld hieraan gericht zijn. Deze verdeling van de oriëntaties doet ons het feit begrijpen dat de magnetische verzadiging van deze stof gering is.

Een verder onderzoek betrof de eigenschap die deze stof gemeen heeft met de andere materialen van de groep „ferroxplana", nl. het bestaan van een voorkeursvlak voor de magnetisatie. In dit vlak is de magnetisatie nagenoeg vrij draaibaar, wat maakt dat deze stoffen bruikbaar zijn als „zacht" magnetisch materiaal, in snel wisselende magnetische velden. De magnetische momenten zijn met name geneigd zich te richten loodrecht op de *c*-as. Om dit verschijnsel te verklaren, heeft men verschillende berekeningen uitgevoerd, waarop echter in het kader van dit artikel niet kan worden ingegaan [14]). Het zij voldoende op te merken dat de structuurbepaling ook hier weer geleid heeft tot een beter begrip van de eigenschappen van de onderzochte stof.

[14]) Zie § 39 in J. Smit en H. P. J. Wijn, Ferrites, Philips Technical Library, 1959.

Samenvatting. Bespreking van de principes en van enkele toepassingen van structuuronderzoek door middel van röntgendiffractie. De elektronenverdeling in een kristal kan worden geschreven als de som van een aantal fouriercomponenten, hier genaamd „dichtheidsgolven". De diffractie door een kristal kan men beschouwen als veroorzaakt door verstrooiing door deze dichtheidsgolven. De röntgenbestraling van zo'n dichtheidsgolf levert alleen een waarneembare reflexie op indien onder een speciale hoek wordt bestraald. De op deze wijze verkregen reflexies van een kristal stellen ons in staat amplitude, golflengte en richting van deze dichtheidsgolven te bepalen. Er ontbreekt dan echter nog de faze van de golven om door middel van een fouriersynthese de elektronenverdeling in een kristal te berekenen. De bepaling van de fazen geschiedt met behulp van modellen van de structuur in een benaderingsprocedure. Diverse hulpmiddelen voor het opstellen van modellen worden besproken, o.a. de methode van Patterson, waarmee men informatie over de atoomafstanden kan verkrijgen. Tot slot volgt een beschrijving van enkele in het Philipslaboratorium uitgevoerde structuurbepalingen. De structuurbepaling van de verbinding $Al_{0.89}Mn_{1.11}$ maakte het mogelijk af te leiden, dat de mangaanatomen in twee niet-equivalente posities in het kristalrooster aanwezig zijn en hierin tegengesteld gerichte oriëntaties van het magnetisch moment hebben. De structuur van Th_2Al bleek vrij grote holten te bevatten; dit vormt de verklaring van de gasbindende eigenschappen van deze stof. De structuur van $Y\text{-}Ba_2Zn_2Fe_{12}{}^{III}O_{22}$, een keramisch magnetisch materiaal (ferroxplana), bleek buitengewoon ingewikkeld (114 atomen in de elementaire cel). Mede dank zij de succesvolle bepaling van de structuur kon het inzicht in de magnetische eigenschappen van deze stof worden verdiept.

Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

OVERZICHT VAN RECENTE WETENSCHAPPELIJKE PUBLIKATIES DER N.V. PHILIPS' GLOEILAMPENFABRIEKEN

Van deze publikaties, voor zover niet met een sterretje * gemerkt, verstrekt de Administratie van Philips' Natuurkundig Laboratorium, Eindhoven, op aanvraag overdrukken.

2708: H. A. Klasens: The temperature dependence of the fluorescence of photoconductors (Phys. Chem. Solids **9**, 185-197, 1959, no. 3/4).

In een eerdere publikatie (no. **2650**) is de invloed van de intensiteit der exciterende straling op het fotogeleidingsvermogen en de fluorescentie van fosforen verklaard met behulp van een model met twee soorten niveaus tussen de valentie- en de geleidingsband, nl. activatorniveaus dicht boven de valentieband en doofniveaus dicht onder de geleidingsband. Bij afwezigheid van exciterende straling zijn deze niveaus alle resp. wel en niet door elektronen bezet. In het huidige artikel worden de gedragingen van het model bij temperatuurveranderingen geanalyseerd. Uit deze analyse blijkt dat de invloed die de temperatuur uitoefent, sterk afhangt van de effectieve doorsneden der activator- en doofcentra voor het „vangen" van resp. gaten en elektronen. Zet men $\log\{(I_0/I)-1)\}$ uit tegen T^{-1} (I = de intensiteit van de fluorescentie, I_0 = de limietwaarde waartoe I nadert als $T \rightarrow 0$), dan krijgt men geen rechte lijnen, zoals bij fosforen die geen fotogeleiding vertonen, en men kan uit deze grafieken geen conclusies trekken omtrent de posities der niveaus tussen valentie- en geleidingsband. De beste manier om de positie der activatorniveaus te bepalen, is de fosfor sterk te bestralen. Zet men dan $\log\{(I_0/I)^{\frac{1}{2}} - (I/I_0)^{\frac{1}{2}}\}$ tegen T^{-1} uit, dan kan men uit de helling van deze lijn de afstand tussen de activatorniveaus en de valentieband afleiden.

2709: J. van Dijk en H. D. Moed: Synthesis of β-phenylethylamine derivatives, VI. Stereoisomers of 1-(4'-hydroxyphenyl)-2-(1''-methyl-2''-phenoxyethylamino) propanol-1. (Rec. Trav. chim. Pays-Bas **78**, 22-42, 1959, no. 1.)

Beschrijving van de synthese van de vier enantiomerenparen van

HO-<⬡>-CHOH-CHCH$_3$-NH-CHCH$_3$-CH$_2$-O-<⬡>.

De stereochemische structuren worden in verband gebracht met die van erytro- en treo-efedrine.

Met behulp van conformatieanalyses is de configuratie van de gevormde amino-alcoholen verklaard.

2710: H. M. Jongerius, J. L. van Koeveringe en H. J. Oskam: Argon-xenon bands (Physica **25**, 406-408, 1959, no. 5).

Korte mededeling over een onderzoek van de gasontladingsspectra van argon, xenon en een mengsel dezer gassen (50% Ar-50% Xe) in het golflengtegebied van 7000-3600 Å. In het spectrum van de rand van het glimlicht werden bij het mengsel twee banden tussen 5500 en 4900 Å gevonden.

2711: G. Meijer: The spectral dependence of flowering and elongation (dissertatie Rijksuniversiteit Utrecht, 8 juni 1959).

De auteur heeft de invloed nagegaan van de kleur van het licht op de lengtegroei van planten en op de bloei van enige planten waarbij het optreden van bloei afhangt van de dagelijkse belichtingsduur (daglengtegevoelige planten). Licht heeft een remmende invloed op de lengtegroei. Bij relatief lage lichtintensiteiten werkt rood licht sterker remmend dan blauw licht, bij relatief hoge lichtintensiteiten is het juist omgekeerd. Ten aanzien van de bloei kan men, zoals bekend, twee typen daglengtegevoelige planten onderscheiden, de kortedagplanten, b.v. Poinsettia, Kalanchoë etc., en de langedagplanten, b.v. bilzenkruid en Petunia. De eerste bloeien alleen dan wanneer de dagelijkse belichtingsduur korter is dan een bepaalde kritische waarde (kritische daglengte), de langedagplanten bloeien alleen wanneer de dagelijkse belichtingsduur langer is dan een kritische daglengte. Bij Salvia occidentalis, een kortedagplant, en Hyocyamus niger en enige andere langedagplanten, werd aangetoond dat de kritische daglengte in hoge mate afhangt van de samenstelling van het licht.

Het was bekend dat men een langedageffect (d.w.z. voor kortedagplanten „niet-bloei"; voor langedagplanten „wèlbloei") ook verkrijgen kan door de donkerperiodes van een kortedagbehandeling (b.v. 10 uur licht per dag) te onderbreken met een korte lichtperiode (stoorlicht; duur b.v. 5 min). Vooral rood licht is als stoorlicht zeer werkzaam. Dit stoorlichteffect van rood licht kan door een direct aansluitende bestraling met nabij infrarood weer worden opgeheven. Uit het onderzoek is gebleken dat: 1) blauw licht dezelfde uitwerking heeft; 2) stoorlicht het meeste effect heeft als de voorafgaande kortedagbelichting nabij infrarood of blauw licht bevat; en 3) het effect van nabij infrarood en blauw licht door rood licht kan worden tenietgedaan.

2712: J. Brug, R. J. E. Esser en G. B. Paerels: The enzymic cleavage of N-acetylneuraminic acid (Biochim. biophys. Acta **33**, 241-242, 1959, no. 1).

Onder invloed van een in een filtraat van Vibrio cholerae aanwezig enzym wordt zowel synthetisch bereid als uit natuurlijk materiaal geïsoleerd N-acetylneuraminezuur afgebroken tot N-acetyl-d-mannosamine, en niet tot N-acetyl-d-glucosamine zoals tot dusverre werd aangenomen. Daar onder de proefomstandigheden geen epimerisatie van N-acetylaminosuikers optreedt, vormt dit resultaat een bewijs voor de juistheid der structuur van N-acetylneuraminezuur zoals deze door Comb en Roseman is voorgesteld.

2713: A. J. W. Duijvestijn: On the transition from superconducting to normal phase, accounting for latent heat and eddy currents (IBM J. Res. Devel. **3**, 132-139, 1959, no. 2).

Exacte mathematische behandeling van de overgang van de supergeleidende naar de normale toestand, die plaatsvindt wanneer een magneetveld van voldoende sterkte wordt aangebracht loodrecht op een halfoneindige plaat die op een constante temperatuur beneden het sprongpunt wordt gehouden. De toeneming van de latente warmte en de dissipatie van de warmte die door de wervelstromen bij de overgang wordt opgewekt, worden in rekening gebracht. Bij wijze van voorbeeld wordt een numerieke berekening uitgevoerd met constanten die ongeveer gelden voor tantaal.

2714: P. Jongenburger en C. W. Berghout: A null-coil magnetometer (Appl. sci. Res. **B 7**, 366-378, 1959, no.5).

De auteurs hebben een instrument (magnetometer) ontwikkeld om de verzadigingsmagnetisatie van kleine monsters ferromagnetisch materiaal te meten. Het monster wordt in het midden van een kleine spoel vast met deze spoel verbonden. Het geheel wordt vervolgens geplaatst in een zo sterk veld dat het monster verzadigd is. Er wordt een plaats gekozen waar het veld inhomogeen is, zodat het monster een kracht ondervindt. Door de spoel wordt een zodanige stroom gestuurd dat de krachten op spoel en monster elkaar compenseren. Onder bepaalde voorwaarden, die in het artikel worden geanalyseerd, zijn de magnetische momenten van monster en spoeltje aan elkaar gelijk. De methode kan worden toegepast met gewone laboratoriummagneten en ook met solenoïdes; ook bij lage temperaturen. Er wordt ook een uitvoering van de magnetometer besproken waarmee men para- en zelfs diamagnetisme kan meten.

2715: W. F. Schalkwijk: A simplified regenerator theory (Trans. ASME **A 81**, 142-150, 1959, no. 2).

Bij heetgasmotoren en koudgaskoelmachines is het rendement van de regenerator van het grootste belang, en bij de ontwikkeling van deze machines is het berekenen van dit rendement dan ook een steeds terugkerend probleem. In dit artikel wordt onderzocht hoe men in rekening kan brengen dat de warmtecapaciteit van de regenerator niet oneindig groot is, vergeleken met die van de per slag doorstromende hoeveelheid gas. In de praktijk blijken bij de meeste regeneratoren in het

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

centrale gedeelte eenvoudige lineair of exponentieel verlopende temperatuurvelden te heersen. Dit opent de mogelijkheid de berekening te vereenvoudigen en toch een nauwkeurigheid te bereiken die voor de praktijk voldoende is. In het praktisch belangrijke symmetrische geval, waarbij de parameters dezelfde waarde hebben voor beide richtingen van de gasstroom, kan men het genoemde effect in rekening brengen door een correctie aan te brengen op de dimensieloze lengteparameter die in de formule voor het rendement optreedt. Deze correctie kan men als functie van een enkel kental van de regenerator aan een enkele kromme ontlenen. In een aanhangsel wordt het algemene geval behandeld. Ook hier blijkt een reductie van het aantal parameters mogelijk.

A 11: E. Kauer, O. E. Klinger en A. Rabenau: Über Leitfähigkeitsmessungen im System ZrO_2-MgO (Z. Elektrochemie **63**, 927-936, 1959, no. 8).

Metingen van het elektrische geleidingsvermogen van zuiver ZrO_2, en van stoffen uit het systeem ZrO_2-MgO, als functie van de temperatuur in het gebied van 500 tot 1500 °C. Ook werden thermospanningen gemeten, waaruit in alle gevallen de aanwezigheid van positieve ladingdragers bleek. De metingen hebben bevestigd dat het geleidingsvermogen, tenminste bij de in normale lucht bestaande partiële druk van de zuurstof, in hoofdzaak door zuurstofvacatures wordt veroorzaakt. De auteurs laten zien dat men — mits men het mechanisme van de elektriciteitsgeleiding kent — in de wijze waarop het geleidingsvermogen afhangt van temperatuur en tijd, over een gevoelige indicatie beschikt omtrent de chemische reacties die in de vaste stof plaatshebben. Niet alleen kan hiermee de samenstelling worden vastgesteld, maar ook leert de methode ons iets over de wijze waarop de reacties als functie van de tijd verlopen.

R 381: J. Ladell en W. Parrish: Determination of spectral contamination of X-ray tubes (Philips Res. Repts. **14**, 401-420, 1959, no. 5).

Beschrijving van een methode om de spectrale zuiverheid van de door röntgenbuizen geleverde straling kwalitatief en kwantitatief te toetsen. Bij deze methode, die gebaseerd is op algemeen bekende principes, wordt gebruik gemaakt van een normale „Norelco" röntgendiffractometer (beschreven in Philips techn. T. **16**, 253-264, 1954), die is uitgerust met een proportionele teller met xenonvulling en een analysator bestaande uit molybdeniumfoelie. De auteurs belichten de theoretische en praktische aspecten van de bepaling der correctiefactoren die nodig zijn om verschillende golflengten te kunnen vergelijken.

R 382: S. Duinker: Generalization to non-linear networks of a theorem due to Heaviside (Philips Res. Repts. **14**, 421-426, 1959, no. 5).

Uitbreiding tot elektrische netwerken met niet-lineaire reactanties en niet-lineaire dissipanties van een door Heaviside uitgesproken en door Lorentz bewezen stelling, betrekking hebbend op lineaire elektromagnetische systemen die worden onderworpen aan een constante, plotseling ingeschakelde elektromotorische kracht. De gegeneraliseerde stelling luidt als volgt: van de arbeid verricht door een plotseling ingeschakelde constante spanningsbron, is het gedeelte dat gebruikt wordt om het elektrische en het magnetische veld van de rusttoestand in de stationaire toestand over te voeren, gelijk aan de som van de energie en de co-energie van het elektrische veld ($\int dV \int EdD + \int dV \int DdE$), verminderd met de som van de energie en de co-energie van het magnetische veld ($\int dV \int HdB + \int dV \int BdH$).

R 383: J. F. Marchand en A. Venema: Note on superconducting tantalum films (Philips Res. Repts. **14**, 427-429, 1959, no. 5).

Het is moeilijk zeer dunne tantaallaagjes te verkrijgen die dezelfde supergeleidende eigenschappen bezitten als massief tantaal. Dit is thans gelukt door tantaal te verdampen en neer te slaan op kwarts in een buitengewoon goed vacuüm, verkregen met de apparatuur die beschreven is in Philips techn. T. **20**, 97-109, 1958.

R 384: D. de Nobel: Phase equilibria and semiconducting properties of cadmium telluride (Philips Res. Repts. **14**, 430-492, 1959, no. 5).

Vervolg van **R 380**.

R 385: K. Teer: Investigations into redundancy and possible bandwidth compression in television transmission (Philips Res. Repts. **14**, 501-556, 1959, no. 6).

In dit proefschrift (Delft, september 1959; zie no. **R 389** voor vervolg en slot) worden de mogelijkheden tot bandbreedtebeperking bij televisie onderzocht. Na een algemene inleiding wordt de redundantie geanalyseerd die bij de normale overbrenging van het beeld aanwezig is. Daaraan worden drie aspecten onderscheiden: het statistische, het fysiologische en het psychologische. Het statistische aspect houdt verband met waarschijnlijkheidsverdelingen van de helderheden van beeldelementen. In het bijzonder wordt de correlatie tussen naburige beeldelementen behandeld. Het fysiologische aspect houdt verband met de eigenschappen van het oog. Achtereenvolgens worden daarvan het scheidend vermogen, de traagheid, het onderscheidend vermogen en het kleuronderscheidend vermogen ten aanzien van de redundantie onderzocht. Het psychologische aspect wordt slechts summier behandeld; het biedt nauwelijks aanknopingspunten voor de praktische televisietechniek.

Na de analyse van de redundantie worden de overbrengingssystemen met beperkte bandbreedte behandeld welke de auteur experimenteel heeft onderzocht. Bij al deze systemen is de beperking in wezen verkregen hetzij door een reductie van het aantal complete beelden dat per seconde wordt overgebracht, nl. door een vermindering van het aantal rasters per seconde, hetzij door vermindering van de per raster overgebrachte informatie. Om de eerstgenoemde methode toe te passen, is een geheugen nodig. De beschrijving beperkt zich tot dit geheugen, waarvoor een opneembuis van het vidicontype werd gebruikt, die als een betrekkelijk eenvoudige uitvoering van zo'n geheugen kan dienen. Vermindering van de informatie per raster kan worden gerealiseerd door middel van geïnterpuncteerde aftasting, of door gebruik te maken van hulpdraaggolven. Deze methodes worden in detail onderzocht en vergeleken. Ten slotte wordt de toepassing ervan bij kleurentelevisie behandeld. Hoofdzakelijk worden daarbij het zg. N.T.S.C.-systeem en een systeem met twee hulpdraaggolven beschreven. Aan het laatste systeem heeft de auteur uitgebreide experimenten verricht.

R 386: F. A. Kröger, F. H. Stieltjes en H. J. Vink: Thermodynamics and formulation of reactions involving imperfections in solids (Philips Res. Repts. **14**, 557-601, 1959, no. 6).

In de literatuur over de fysica en de fysische chemie van de vaste stof gebruikt men ter aanduiding van onvolkomenheden in het kristal vele verschillende symbolen voor hetzelfde ding. Ernstiger is dat verschillende auteurs hetzelfde symbool gebruiken met verschillende betekenis. Dit leidt gemakkelijk tot verwarring. Bij nadere analyse blijkt de oorzaak te schuilen in het feit dat men in hoofdzaak de theorie van de vaste stof kan presenteren volgens twee systemen, die in dit artikel worden geanalyseerd en vergeleken. Daartoe is het nodig een aantal begrippen in te voeren; deze worden in het artikel zorgvuldig gedefinieerd. Het blijkt dat het door Schottky ingevoerde systeem zich kenmerkt doordat de „variabelen die de hoeveelheid stof aangeven" (stofhoeveelheidsvariabelen) meestal betrekking hebben op „relatieve bouwelementen". Daardoor kan men deze variabelen met echte thermodynamische potentialen in verband brengen, en kunnen ze ook als componenten in de fazeregel optreden. Bij het andere systeem hebben de „stofhoeveelheidsvariabelen" geen betrekking op „bouwelementen", maar op „structuurelementen" en op associaties hiervan. Deze variabelen kan men niet met echte thermodynamische potentialen in verband brengen, maar wel met „virtuele potentialen". Doet men dit laatste, dan kan men er alle problemen mee behandelen, en zelfs dikwijls veel gemakkelijker dan volgens het eerste systeem. Ook verschijnen de variabelen als quasi-componenten in de fazeregel en vereenvoudigen ze ook hier de behandeling. Dit wordt toegelicht door verscheidene gevallen van wanorde met behulp van het systeem van structuurelementen te behandelen. Ook ter beschrijving van die eigenschappen van een kristal die niet in verband staan met de thermodynamica der reacties, kan men het systeem der structuurelementen met voordeel toepassen.

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!